

# AROMATIC POLYCARBONATE RESIN COMPOSITION

Publication number: DE10080144 (T0)

Publication date: 2001-03-22

Inventor(s): NISHIHARA HAJIME [JP]

Applicant(s): ASAHI CHEMICAL IND [JP]

Classification:

- international: **C08K5/541; C08K5/549; C08L69/00; C08K3/00; C08K5/00; C08K5/42; C08K5/51; C08L23/00; C08L25/00; C08L63/00; C08L67/00; C08L71/12; C08L77/00; C08L83/04; C08K5/00; C08L69/00; C08K3/00; C08L23/00; C08L25/00; C08L63/00; C08L67/00; C08L71/00; C08L77/00; C08L83/00; (IPC1-7): C08L69/00; C08K5/23; C08K5/3472; C08K5/3492; C08K5/42; C08K5/5399**

- European: C08K5/541; C08K5/549; C08L69/00; C08L69/00

Application number: DE20001080144T 20000208

Priority number(s): JP19990030030 19990208; JP19990329939 19991119; WO2000JP00681 20000208

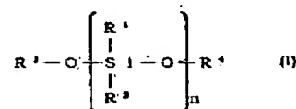
Also published as:

WO0046299 (A1)

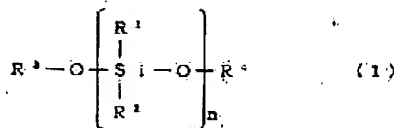
Abstract not available for DE 10080144 (T0)

Abstract of corresponding document: **WO 0046299 (A1)**

An aromatic polycarbonate resin composition, characterized by comprising (A) a resin component selected from among aromatic polycarbonates and mixtures thereof with other organic polymer resins which have aromatic polycarbonate contents of 50 wt. % or above, and (B) a linear or cyclic aromatic silicone component which contains a monomer or polymer represented by general formula (1) or a mixture of both and whose aromatic group content is 5 to 100 % by mole based on the total amount of R<1> and R<2>.



(1) :



Data supplied from the *esp@cenet* database — Worldwide



①9 BUNDESREPUBLIK  
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES  
PATENT- UND  
MARKENAMT

⑫ **Veröffentlichung**  
⑩ **DE 100 80 144 T 1**

⑤1 Int. Cl. 7:  
**C 08 L 69/00**  
C 08 K 5/42  
C 08 K 5/3492  
C 08 K 5/3472  
C 08 K 5/5399  
C 08 K 5/23

der internationalen Anmeldung mit der  
⑧7 Veröffentlichungsnummer: WO 00/46299 in  
deutscher Übersetzung (Art. III § 8 Abs. 2 IntPatÜG)  
⑦1 Deutsches Aktenzeichen: 100 80 144.7  
⑧6 PCT-Aktenzeichen: PCT/JP00/00681  
⑧6 PCT-Anmeldetag: 8. 2. 2000  
⑧7 PCT-Veröffentlichungstag: 10. 8. 2000  
④3 Veröffentlichungstag der PCT-Anmeldung  
in deutscher Übersetzung: 22. 3. 2001

③0 Unionspriorität:

11/30030 08. 02. 1999 JP  
11/329939 19. 11. 1999 JP

⑦1 Anmelder:

Asahi Kasei Kogyo K.K., Osaka, JP

⑦4 Vertreter:

Strehl, Schübel-Hopf & Partner, 80538 München

⑦2 Erfinder:

Nishihara, Hajime, Yokohama, Kanagawa, JP

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤4 Aromatische Polycarbonatharz-Zusammensetzung

DE 100 80 144 T 1

DE 100 80 144 T 1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

DEA-53429

## Aromatische Polycarbonatharz-Zusammensetzung

## HINTERGRUND DER ERFINDUNG

Gebiet der Erfindung

Die vorliegende Erfindung bezieht sich auf eine aromatische Polycarbonatharz-Zusammensetzung. Spezieller betrifft die Erfindung eine aromatische Polycarbonatharz-Zusammensetzung, welche (A) ein aromatisches Polycarbonat oder ein Harzgemisch aus einem aromatischen Polycarbonat und mindestens einem von einem aromatischen Polycarbonat verschiedenen organischen Polymerharz und (B) mindestens eine aromatische Gruppen enthaltende Siliconverbindung, die aus der aus aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit linearer Konfiguration und aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit cyclischer Konfiguration bestehenden Gruppe ausgewählt ist, enthält, wobei die Komponente (B) eine aromatische Gruppe in einer spezifischen Menge enthält. Die erfindungsgemäße aromatische Polycarbonatharz-Zusammensetzung besitzt nicht nur ausgezeichnete Feuerhemmung, sondern auch ausgezeichnete Schmelzfluidität und ausgezeichnete Schmelzformungsstabilität (d. h. im wesentlichen keine Variationen oder nur kleine Variationen der Qualität von durch Schmelzformen erhaltenen Formkörpern). Durch Verformen der erfindungsgemäßen aromatischen Polycarbonatharz-Zusammensetzung können Formkörper erhalten werden, die ausgezeichnete mechanische Eigenschaften, ausgezeichnete Lichtbeständigkeit und überragendes Aussehen besitzen.

Stand der Technik

Polycarbonate, die geringes Gewicht haben und ausgezeichnete Schlagfestigkeit besitzen, werden auf verschiedenen

28.08.00

- 2 -

Gebieten eingesetzt, wie für Automobilteile, Teile zur Verwendung in elektrischen Haushaltsgeräten und Teile zur Verwendung in automatischen Büromaschinen. Polycarbonate sind jedoch leicht brennbar und die Verwendung von Polycarbonaten ist aufgrund ihrer Brennbarkeit beschränkt.

Als Methode zum Ausstatten von Harzen mit flammhemmenden Eigenschaften ist es bekannt, ihnen flammhemmende Mittel zuzusetzen, wie halogenhaltige flammhemmende Mittel, phosphorhaltige flammhemmende Mittel und anorganische flammhemmende Mittel. Das Ziel, Harze mit Flammhemmung auszustatten, wurde durch Verwendung dieser Flammschutzmittel in gewissem Maß erreicht. In den letzten Jahren ist jedoch die Anforderung an eine verbesserte Sicherheit im Fall eines Brandes angestiegen. In Übereinstimmung mit den steigenden Anforderungen wurden auf dem Fachgebiet Untersuchungen durchgeführt, um verbesserte Methoden zu entwickeln, Harze mit flammhemmenden Eigenschaften auszustatten. Außerdem wurde für diese Methoden zum Erzeugen von flammhemmenden Eigenschaften gewünscht, dass diese den Vorteil haben, keine Umweltprobleme zu verursachen oder dass keine Verschlechterung der mechanischen Eigenschaften der Harze verursacht wird.

Es sind auch Methoden bekannt, bei denen organische Siliconverbindungen als Flammschutzmittel für Harze verwendet werden. So offenbart beispielsweise die nicht geprüfte offengelegte japanische Patentanmeldung Nr. 63-41565 ein Rauchunterdrückungsmittel, das einen Kohlenwasserstoff, ein Silicon und Zinkborat enthält. Jede der US-Patentschriften 4 497 925 und 4 387 176 offenbart eine flammhemmende Harzzusammensetzung, die ein Dimethylsilicon enthält. Jedes der in den vorstehenden drei Dokumenten des Standes der Technik beschriebenen Silicone hat einen extrem niederen Anteil einer aromatischen Gruppe (weniger als 5 Mol-%). Wenn ein solches flammhemmendes Mittel (das ein Silicon mit einem niederen Gehalt an aromatischen Gruppen enthält) mit einem aromatische Gruppen enthaltenden Harz unter Bildung einer Harzzusammensetzung vermischt wird, besteht wegen der schlechten

Verträglichkeit die Tendenz zum Auftreten einer Phasentrennung zwischen dem Silicon und dem Harz. Wenn daher eine solche Harzzusammensetzung unter Bildung eines Formkörpers verformt wird, tritt die Schwierigkeit auf, dass die mechanischen Eigenschaften des Formkörpers, wie Schlagfestigkeit, verschlechtert werden.

Diese Arten von flammhemmenden Mitteln sind daher für die praktische Anwendung nicht zufriedenstellend.

Die ungeprüfte offengelegte japanische Patentanmeldung Nr. 63-162756 offenbart eine Harzzusammensetzung, die ein aromatisches Polycarbonat, ein Polyolefin und eine Siliconflüssigkeit enthält, wobei angegeben ist, dass die Harzzusammensetzung verbesserte Abriebbeständigkeit besitzt. Das in diesem Dokument des Standes der Technik beschriebene Silicon hat jedoch einen sehr geringen Gehalt an aromatischen Gruppen. Daher zeigt die in diesem Dokument offenbarte Harzzusammensetzung im wesentlichen die gleiche Schwierigkeit, die vorstehend im Zusammenhang mit der erwähnten nicht geprüften offengelegten japanischen Patentanmeldung 63-41565 und den US-Patentschriften 4 497 925 und 4 387 176 beschrieben wurde.

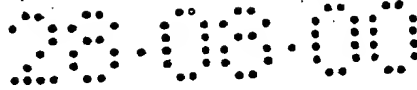
Die nicht geprüften offengelegten japanischen Patentanmeldungen 10-139964 und 11-140294 offenbaren eine flammhemmende aromatische Polycarbonatharz-Zusammensetzung, die ein verzweigtes Methylphenylsilicon und/oder ein vernetztes Methylphenylsilicon enthält. Wegen ihrer verzweigten und vernetzten Struktur zeigen jedoch die genannten Methylphenylsilicone schlechte Verträglichkeit mit einem aromatischen Polycarbonatharz. Infolgedessen zeigt jedes dieser verzweigten und vernetzten Methylphenylsilicone die Schwierigkeit, dass seine Dispergierbarkeit in der Harzzusammensetzung schlecht ist. Außerdem besteht bei der in diesem Dokument des Standes der Technik offenbarten aromatischen Polycarbonatharz-Zusammensetzung das Problem, dass diese schlechte flammhemmende Eigenschaften zeigt.

Ein Methylphenylsilicon, das keine verzweigte oder vernetzte Struktur hat, ist bekannt und wurde als Öl für eine Diffusionspumpe oder für ein Hochtemperatur-Ölbad verwendet. Über diesen Typ eines Methylphenylsilicons besteht jedoch keinerlei Bericht, der nahelegen würde, dass eine Polycarbonatharz-Zusammensetzung, die nicht nur ausgezeichnete flammhemmende Eigenschaften hat, sondern auch ausgezeichnete mechanische Eigenschaften besitzt, durch kombinierte Verwendung des vorstehend erwähnten Silicons und eines aromatischen Polycarbonats erhalten wurde.

Als Kombination aus einem Silicon und einem von einem Polycarbonat verschiedenen Harz ist außerdem eine Zusammensetzung bekannt, die einen Polyphenylenether und ein Phenylsiloxan enthält (nicht geprüfte offengelegte japanische Patentanmeldung 5-70680). In dieser Zusammensetzung wird ein aromatische Gruppen enthaltendes Polyorganosiloxan mit linearer Konfiguration als Flammenschutzmittel verwendet. Da jedoch diese Zusammensetzung als Harzkomponente einen Polyphenylenether enthält, besitzt diese Zusammensetzung schlechte Schlagfestigkeit und schlechte Lichtbeständigkeit. Diese bekannte Methode zeigt daher keine Lösung für die Probleme auf, von denen Polycarbonatharze begleitet sind.

#### ZUSAMMENFASSUNG DER ERFINDUNG

In dieser Situation wurden erfindungsgemäß ausgedehnte und intensive Untersuchungen zum Zweck der Entwicklung einer Polycarbonatharz-Zusammensetzung durchgeführt, die frei von den vorstehend erwähnten Schwierigkeiten ist, speziell zum Entwickeln einer Polycarbonatharz-Zusammensetzung, die vorteilhaft nicht nur deshalb ist, weil sie ausgezeichnete flammhemmende Eigenschaften, ausgezeichnete Schmelzfluidität und ausgezeichnete Schmelzformungsstabilität hat (d. h. im wesentlichen keine Variation oder nur eine geringe Variation der Qualität von durch Schmelzformen erhaltenen Formkörpern),



sondern auch deshalb, weil sie zur Herstellung eines Formkörpers mit ausgezeichneten mechanischen Eigenschaften, ausgezeichneter Lichtbeständigkeit und hervorragendem Aussehen verwendet werden kann. Dabei wurde unerwarteterweise gefunden, dass nicht nur einem aromatischen Polycarbonat hohe Flammhemmung verliehen werden kann, sondern dass auch die vorstehend erwähnten anderen Eigenschaften eines aromatischen Polycarbonats verbessert werden können, indem mindestens eine spezifische aromatische Gruppen enthaltende Siliconverbindung, die aus der aus aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit linearer Konfiguration und aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit cyclischer Konfiguration bestehenden Gruppe ausgewählt ist, wobei die Siliconverbindung eine aromatische Gruppe in einer spezifischen Menge enthält, verwendet wird.

Auf Basis dieser neuen Erkenntnisse wurde die vorliegende Erfindung fertiggestellt.

Es ist somit vorherrschende Aufgabe der Erfindung, eine aromatische Polycarbonatharz-Zusammensetzung zur Verfügung zu stellen, die vorteilhaft nicht nur deshalb ist, weil sie ausgezeichnete Flammhemmung, ausgezeichnete Schmelzfluidität und ausgezeichnete Schmelz-Formungsstabilität (im wesentlichen keine Variation oder nur kleine Variation der Qualität von durch Schmelzformen erhaltenen Formkörpern) zeigt, sondern auch deshalb, weil sie zur Herstellung eines Formkörpers mit ausgezeichneten mechanischen Eigenschaften, ausgezeichneter Lichtstabilität und überragendem Aussehen verwendet werden kann.

Die vorstehenden und andere Gegenstände, Merkmale, und Vorteile der Erfindung sind aus der folgenden detaillierten Beschreibung und den Patentansprüchen ersichtlich.

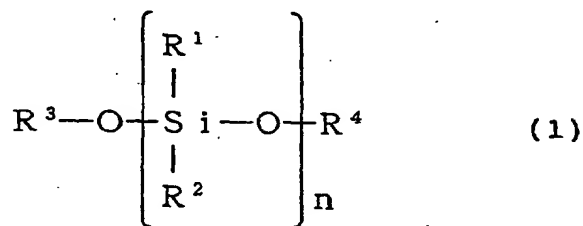
#### AUSFÜHRLICHE BESCHREIBUNG DER ERFINDUNG

Erfindungsgemäß wird eine aromatische Polycarbonatharz-Zusammensetzung geschaffen, welche enthält:

100 Gew.-Teile einer Harzkomponente (A), die aus der aus einem aromatischen Polycarbonat und einem Harzgemisch aus einem aromatischen Polycarbonat und mindestens einem anderen organischen Polymerharz bestehenden Gruppe ausgewählt ist, wobei das Harzgemisch einen Gehalt an aromatischem Polycarbonat von 50 Gew.-% oder mehr aufweist, und

0,1 bis 100 Gew.-Teile mindestens einer aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindung (B), die ausgewählt ist aus der aus aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit linearer Konfiguration und aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit cyclischer Konfiguration bestehenden Gruppe,

wobei die mindestens eine aromatische Gruppen enthaltende Siliconverbindung (B) ein Monomeres, ein Polymeres oder ein Gemisch davon umfasst, welches durch die nachstehende Formel (1) dargestellt ist:



worin

jedes von  $\text{R}^1$  und  $\text{R}^2$  unabhängig ein Wasserstoffatom oder eine einwertige  $\text{C}_1$ - $\text{C}_{20}$ -Kohlenwasserstoffgruppe bedeutet;

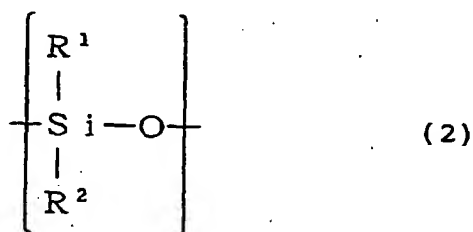
jedes von  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  unabhängig ein Wasserstoffatom oder eine einwertige oder zweiwertige  $\text{C}_1$ - $\text{C}_{20}$ -Kohlenwasserstoffgruppe bedeutet, wobei dann, wenn jedes von  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  unabhängig eine zweiwertige  $\text{C}_1$ - $\text{C}_{20}$ -Kohlenwasserstoffgruppe darstellt,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  unter Bildung eines Ringes aneinander gebunden sind,



mindestens eines von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  eine  $C_6$ - $C_{20}$ -aromatische Gruppe mit einer der Definition von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  oder  $R^4$  entsprechenden Valenz darstellt und

$n$  1 oder mehr ist und den Zahlendurchschnitt des  $n$ -Werts bedeutet,

wobei das Polymere als Komponente (B) zahlreiche wiederkehrende Einheiten, die jeweils durch die nachstehende Formel (2) dargestellt sind,



worin jedes von  $R^1$  und  $R^2$  wie für Formel (1) definiert ist, und

endständige  $R^3$  und  $R^4$ -Gruppen enthält, wobei jedes von  $R^3$  und  $R^4$  wie für Formel (1) definiert ist,

wobei die durch Formel (2) dargestellten wiederkehrenden Einheiten gleich oder verschieden sind, so dass das Polymere als Komponente (B) ein Homopolymeres oder Copolymeres ist, wobei das Copolymeres regellose, Block- oder alternierende Konfiguration hat, und

wobei die Komponente (B) die aromatische Gruppe in einer Menge von 5 bis 100 Mol-%, bezogen auf die gesamte molare Menge von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$ , enthält.

Zum leichteren Verständnis der vorliegenden Erfindung werden nachstehend die wesentlichen Merkmale und verschiedenen bevorzugten Ausführungsformen der Erfindung aufgelistet.

1. Aromatische Polycarbonatharz-Zusammensetzung, welche enthält:

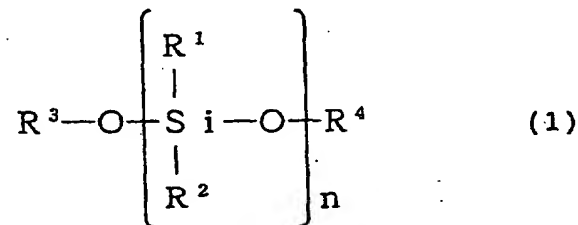
28.08.00

- 8 -

100 Gew.-Teile einer Harzkomponente (A), die aus der aus einem aromatischen Polycarbonat und einem Harzgemisch aus einem aromatischen Polycarbonat und mindestens einem von einem aromatischen Polycarbonat verschiedenen organischen Polymerharz bestehenden Gruppe ausgewählt ist, wobei das Harzgemisch einen Gehalt an aromatischem Polycarbonat von 50 Gew.-% oder mehr hat, und

0,1 bis 100 Gew.-Teile mindestens einer aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindung (B), welche aus der aus aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit linearer Konfiguration und aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit cyclischer Konfiguration bestehenden Gruppe ausgewählt ist,

wobei die mindestens eine aromatische Gruppen enthaltende Siliconverbindung (B) ein Monomeres, ein Polymeres oder ein Gemisch davon umfasst, welches durch die nachstehende Formel (1) dargestellt ist



worin:

jedes von  $\text{R}^1$  und  $\text{R}^2$  unabhängig ein Wasserstoffatom oder eine einwertige  $\text{C}_1$ - $\text{C}_{20}$ -Kohlenwasserstoffgruppe darstellt;

jedes von  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  unabhängig ein Wasserstoffatom oder eine einwertige oder zweiwertige  $\text{C}_1$ - $\text{C}_{20}$ -Kohlenwasserstoffgruppe darstellt, wobei dann, wenn jedes von  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  unabhängig eine zweiwertige  $\text{C}_1$ - $\text{C}_{20}$ -Kohlenwasserstoffgruppe bedeutet,  $\text{R}^3$  und  $\text{R}^4$  unter Bildung eines Ringes aneinander gebunden sind,

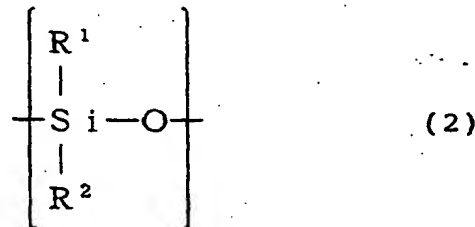
28.08.00

- 9 -

mindestens eines von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  eine aromatische  $C_6$ - $C_{20}$ -Gruppe ist, deren Valenz der Definition von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  oder  $R^4$  entspricht, und

$n$  1 oder mehr, angegeben als Zahlenmittel des  $n$ -Wertes, ist,

wobei das Polymere als Komponente (B) mehrere wiederkehrende Einheiten, die jeweils durch die nachstehende Formel (2) dargestellt sind:



in der jedes von  $R^1$  und  $R^2$  wie für Formel (1) definiert ist, und

endständige Gruppen  $R^3$  und  $R^4$  umfasst, worin jedes von  $R^3$  und  $R^4$  wie für Formel (1) definiert ist,

wobei die wiederkehrenden Einheiten, die jeweils durch Formel (2) dargestellt sind, gleich oder verschieden sind, so dass das Polymere als Komponente (B) ein Homopolymeres oder ein Copolymeres ist, wobei das Copolymeres regellose, Block- oder alternierende Konfiguration hat, und

wobei die Komponente (B) die aromatische Gruppe in einer Menge von 5 bis 100 Mol-%, bezogen auf die gesamte molare Menge von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$ , enthält.

2. Polycarbonatharz-Zusammensetzung entsprechend dem obigen Punkt 1, wobei die Komponente (B) eine kinematische Viskosität von 1  $\text{cm}^2/\text{sec}$  (100 Centistokes) oder mehr, gemessen bei 25 °C nach JIS-K2410, zeigt.

3. Polycarbonatharz-Zusammensetzung gemäß dem obigen Punkt 1 oder 2, wobei die Komponente (B) ein Gemisch aus



einer Siliconverbindung, welche aromatische Gruppen in einer Menge von 5 bis weniger als 50 Mol-%, bezogen auf die gesamte molare Menge an  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$ , enthält und

einer Siliconverbindung, welche die aromatische Gruppe in einer Menge von 50 Mol-% oder mehr, bezogen auf die gesamte molare Menge an  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$ , enthält, umfasst.

4. Polycarbonatharz-Zusammensetzung entsprechend einem der obigen Punkte 1. bis 3., die weiterhin 0,001 bis 100 Gew.-Teile eines flammhemmenden Mittels (C) enthält.

5. Polycarbonatharz-Zusammensetzung gemäß dem vorstehenden Punkt 4, wobei das flammhemmende Mittel (C) mindestens ein flammhemmendes Mittel, das aus der nachstehenden Gruppe ausgewählt ist, enthält: Metallsalze als flammhemmende Mittel, phosphorhaltige flammhemmende Mittel, stickstoffhaltige flammhemmende Mittel, Silicium enthaltende flammhemmende Mittel, die von der Siliconverbindung (B) verschieden sind, anorganische flammhemmende Mittel und fluorhaltige flammhemmende Mittel.

6. Polycarbonatharz-Zusammensetzung gemäß dem vorstehenden Punkt 5, wobei das flammhemmende Metallsalz ein Metallsalz einer organischen Schwefelverbindung darstellt.

7. Polycarbonatharz-Zusammensetzung gemäß dem vorstehenden Punkt 6, wobei das Metallsalz einer organischen Schwefelverbindung ein Metallsalz einer organischen Sulfonsäure ist.

8. Polycarbonatharz-Zusammensetzung gemäß dem vorstehenden Punkt 5, wobei das flammhemmende Metallsalz ein aromatisches organisches Polymeres umfasst, welches Sulfonsäuremetallsalzgruppen enthält.

9. Polycarbonatharz-Zusammensetzung gemäß dem vorstehenden Punkt 5, wobei das Stickstoff enthaltende flammhemmende



DE 100 80 144 TT

- 11 -

Mittel mindestens eine Verbindung aus der Gruppe Triazinverbindungen, Triazolverbindungen, Tetrazolverbindungen, Phosphazenverbindungen und Diazoverbindungen enthält.

10. Polycarbonatharz-Zusammensetzung gemäß einem der vorstehenden Punkte 1 bis 9, wobei die Harzkomponente (A) ein Harzgemisch aus einem aromatischen Polycarbonat und mindestens einem organischen Polymeren ist, welches aus der aus aromatischen Vinylpolymeren, Olefinpolymeren, Polyestern, Polyamiden, Polyphenylenethern und Epoxypolymeren bestehenden Gruppe ausgewählt ist.

Die vorliegende Erfindung wird nachstehend ausführlicher beschrieben.

Die erfindungsgemäße aromatische Polycarbonatharz-Zusammensetzung enthält 100 Gew.-Teile einer Harzkomponente (A), die aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus einem aromatischen Polycarbonat und einem Harzgemisch aus einem aromatischen Polycarbonat und mindestens einem von einem aromatischen Polycarbonat verschiedenen organischen Polymerharz besteht, wobei das Harzgemisch einen aromatischen Polycarbonatgehalt von 50 Gew.-% oder mehr aufweist, und 0,1 bis 100 Gew.-Teile mindestens einer aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindung (B), die aus der aus aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit linearer Konfiguration und aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit cyclischer Konfiguration bestehenden Gruppe ausgewählt ist, wobei die Komponente (B) die aromatische Gruppe in einer spezifischen Menge enthält.

Die erwähnte Komponente (B) wirkt nicht nur als flammhemmendes Mittel für die erwähnte Harzkomponente (A), sondern verleiht auch der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung ausgezeichnete Fließfähigkeit in der Schmelze und ausgezeichnete Stabilität beim Schmelzformen (d. h. es treten praktisch keine Variationen oder nur kleine Variationen der Qualität von Formkörpern auf, die durch Schmelzformen erhalten werden)



und verbessert die mechanischen Eigenschaften, die Lichtbeständigkeit und das Aussehen von Formkörpern, die durch Verformen der erfindungsgemäßen aromatischen Polycarbonatharzzusammensetzung erhalten werden.

Von der Funktion der Komponente (B) als flammhemmendes Mittel wird angenommen, dass unmittelbar nach dem Beginn des Brennens der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung (insbesondere wenn sie als Formkörper vorliegt) ein von der Komponente (B) stammender Film aus Siliciumdioxid auf der Oberfläche der Harzzusammensetzung gebildet wird und dass dieser Siliciumdioxidfilm die flammhemmende Eigenschaft der Harzkomponente (A) verbessert.

Die Flammhemmung der Harzkomponente (A) kann durch die Komponente (B) stark verbessert werden. Es wird angenommen, dass der Mechanismus der großen Verbesserung der Flammhemmung der Harzkomponente (A) durch die Komponente (B) wie folgt ist:

Komponente (B) enthält eine aromatische Gruppe. Aus diesem Grund zeigt Komponente (B) eine gute Verträglichkeit mit der Harzkomponente (A), so dass in der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung die Komponente (B) in der Harzkomponente (A) fein dispergiert ist, wodurch die Flammhemmung der Harzkomponente (A) stark verbessert wird.

Außerdem ist Komponente (B) eine aromatische Gruppen enthaltende Siliconverbindung, die aus der Gruppe der aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit linearer Konfiguration und der aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit cyclischer Konfiguration ausgewählt ist, und daher hat Komponente (B) keine verzweigte oder vernetzte Struktur. Wenn daher ein durch Verformen der erfindungsgemäßen aromatischen Polycarbonatharz-Zusammensetzung gebildeter Formkörper zu brennen beginnt, wird die Bewegung der Moleküle der Komponente (B) stark gefördert, so dass die Verträglichkeit der Komponente (B) mit der Harzkomponente (A) weiter verbessert wird. Infolgedessen wird die Reaktion von Siloxangruppen in Komponente (B) mit Carbonatgruppen in der

Harzkomponente (A) beschleunigt, wodurch das Brennen der Harzkomponente (A) wirksam unterdrückt wird. Das Siliciumatom der Komponente (B) ist ein Element, das niedere Oberflächenenergie aufweist. In dem durch Verformen der erfindungsgemäßen aromatischen Polycarbonatharz-Zusammensetzung erhaltenen Formkörper befindet sich daher die Komponente (B) an einem Ort, der auf den Oberflächenbereich ausgerichtet ist. Außerdem enthält Komponente (B) eine Verbindung mit linearer Konfiguration und/oder eine Verbindung mit cyclischer Konfiguration und deshalb besitzt Komponente (B) keine verzweigte oder vernetzte Struktur. Aus diesem Grund wird die Bewegung der Komponente (B) in den Oberflächenbereich des Formkörpers gefördert.

Im Ergebnis ist dann, wenn der durch Verformen der erfindungsgemäßen aromatischen Polycarbonatharz-Zusammensetzung erhaltene Formkörper zu brennen beginnt, die Konzentration der Komponente (B) im Oberflächenbereich des Formkörpers hoch, so dass der Formkörper ausgezeichnete Flammhemmung zeigt.

Wenn der Formkörper die folgende Formel erfüllt

$$2 \leq C^1/C^2 \leq 100$$

worin  $C^1(\%)$  die Durchschnittskonzentration der Siliciumatome im Oberflächenbereich des Formkörpers von der Oberfläche bis zur Tiefe von 50 Å (5 nm), gemessen durch Röntgen-Photoelektronen-Spektroskopie, darstellt, und  $C^2(\%)$  die Durchschnittskonzentration der Siliciumatome in dem gesamten Formkörper, gemessen durch Röntgenfluoreszenzanalyse, darstellt, zeigt der Formkörper besonders ausgezeichnete Flammhemmung.

Das erfindungsgemäß als Harzkomponente (A) vorliegende aromatische Polycarbonat (nachstehend häufig als "PC" bezeichnet) ist unter aromatischen Homopolycarbonaten und aromatischen Copolycarbonaten ausgewählt (wobei das aromatische Homopolycarbonat unter Verwendung einer einzigen Art

28.08.00

- 14 -

einer bifunktionellen Phenolverbindung und ein aromatisches Copolycarbonat unter Verwendung von mehreren verschiedenen Arten von bifunktionellen Phenolverbindungen hergestellt wird).

Beispiele für Methoden zur Herstellung von PC umfassen die Phosgenmethode, bei der Phosgen in Gegenwart von kaustischem Alkali und eines Lösungsmittels in eine bifunktionelle Phenolverbindung eingeblasen wird und eine Umesterungsmethode, bei der beispielsweise eine bifunktionelle Phenolverbindung und Diethylcarbonat der Umesterung in Gegenwart eines Katalysators unterworfen werden.

Zu Beispielen für bifunktionelle Phenolverbindungen gehören 2,2'-Bis(4-hydroxyphenyl)propan, 2,2'-Bis(4-hydroxy-3,5-dimethylphenyl)propan, Bis(4-hydroxyphenyl)methan, 1,1'-Bis(4-hydroxyphenyl)ethan, 2,2'-Bis(4-hydroxyphenyl)butan, 2,2'-Bis(4-hydroxy-3,5-diphenyl)butan, 2,2'-Bis(4-hydroxy-3,5-dipropylphenyl)propan, 1,1'-Bis(4-hydroxyphenyl)cyclohexan und 1-Phenyl-1,1'-bis(4-hydroxyphenyl)ethan. 2,2'-Bis(4-hydroxyphenyl)propan (d. h. Bisphenol A) wird besonders bevorzugt. Wie vorstehend erwähnt, können erfindungsgemäße bifunktionelle Phenolverbindungen einzeln oder in Kombination eingesetzt werden.

Ein bevorzugter Bereich des Viskositätsmittels des Molekulargewichts des PC ist 10.000 bis 100.000. Das Viskositätsmittel des Molekulargewichts des PC kann durch Gelpermeationschromatographie gemessen werden.

Das vorstehend erwähnte Harzgemisch aus PC und mindestens einem organischen Polymerharz, das verschieden von PC ist, welches als Harzkomponente (A) verwendet wird, hat einen PC-Gehalt von 50 Gew.-% oder mehr, vorzugsweise von 70 Gew.-% oder mehr.

Zu Beispielen für andere organische Polymerharze als PC gehören andere thermoplastische Harze als PC, Kautschuk-Polymer, thermisch härtende Harze und dergl. Unter diesen Harzen



werden von PC verschiedene thermoplastische Harze und Kautschukpolymere bevorzugt. Besonders bevorzugt werden thermoplastische Harze, die von PC verschieden sind.

Im Hinblick auf die von PC verschiedenen anderen erwähnten thermoplastischen Harze besteht keine spezielle Beschränkung, solange die thermoplastischen Harze und PC miteinander homogen dispergierbar sind. Zu Beispielen für solche thermoplastische Harze gehören aromatische Vinylpolymere, Polyphenylenether, Olefinpolymere, Vinylchloridpolymere, Polyamide, Polyester, Polyphenylensulfide, Polymethacrylate und Epoxyharze. Diese thermoplastischen Harze können einzeln oder in Kombination eingesetzt werden. Es wird bevorzugt, mindestens ein thermoplastisches Harz zu verwenden, welches aus der aus aromatischen Vinylpolymeren, Olefinpolymeren, Polyestern, Polyamiden, Polyphenylenethern und Epoxypolymeren bestehenden Gruppe ausgewählt ist.

Die oben erwähnten aromatischen Vinylpolymeren, die in dem als Komponente(A) vorliegenden Harzgemisch verwendet werden können, sind kautschukmodifizierte aromatische Vinylpolymere und/oder nicht kautschukmodifizierte aromatische Vinylpolymere, vorzugsweise kautschukmodifizierte aromatische Vinylpolymere oder ein Gemisch aus einem kautschukmodifizierten aromatischen Vinylpolymeren und einem nicht kautschukmodifizierten aromatischen Vinylpolymeren.

Für das aromatische Vinylpolymere existiert keine spezielle Beschränkung, solange das aromatische Vinylpolymere und PC ineinander homogen dispergierbar sind.

Ein kautschukmodifiziertes aromatisches Vinylpolymeres ist ein Polymeres mit einer Struktur, in der eine aus einer teilchenförmigen Kautschukkomponente für die Modifizierung bestehende Dispersionsphase in einer aus einem aromatischen Vinylpolymeren bestehenden kontinuierlichen Phase dispergiert ist. Ein kautschukmodifiziertes aromatisches Vinylpolymeres kann durch Pfropfpolymerisation eines aromatischen Vinylmonomeren und gegebenenfalls eines mit dem aromatischen Vinylmonomeren copolymerisierbaren Vinyl-Comonomeren auf einer für

die Modifizierung geeigneten Kautschukkomponente unter Anwendung einer üblichen Methode, wie einer Massepolymerisationsmethode, einer Emulsionspolymerisationsmethode oder Suspensionspolymerisationsmethode, erhalten werden.

Beispiele für kautschukmodifizierte aromatische Vinylpolymere umfassen die sogenannten hochschlagfesten Polystyrole (high impact polystyrene, häufig auch als "HIPS" bezeichnet), ABS-Polymere (Acrylnitril/Butadien/Styrol-Copolymere), AAS-Polymere (Acrylnitril/Acrylkautschuk/Styrol-Copolymere), AES-Polymere (Acrylnitril/Ethylen-Propylen-Kautschuk/Styrol-Copolymere) und dergleichen.

Was die oben erwähnte Kautschukkomponente für die Modifizierung betrifft, die bei der Herstellung eines kautschukmodifizierten aromatischen Vinylpolymeren verwendet wird, wird bevorzugt, dass die Kautschukkomponente für die Modifizierung eine Glasübergangstemperatur ( $T_g$ ) von  $-30^{\circ}\text{C}$  oder weniger hat. Wenn die modifizierende Kautschukkomponente eine Glasübergangstemperatur von mehr als  $-30^{\circ}\text{C}$  hat, kann in manchen Fällen die Verbesserung der Schlagfestigkeit unzureichend sein. Die Glasübergangstemperatur ( $T_g$ ) der Kautschukkomponente für die Modifizierung kann durch Differential-Scanningcalorimetrie (DSC) gemessen werden, wie in "Polymer Handbook" (herausgegeben von J. Brandrup, A. Wiley-Interscience Publication, John Wiley & Sons, New York (1975)) beschrieben ist.

Zu Beispielen für geeignete Kautschukkomponenten für die Modifizierung gehören Dienkautschuke, wie Polybutadien, Poly(styrol-butadien) und Poly(acrylnitril-butadien), gesättigte Kautschuke, die durch Hydrierung der oben erwähnten Dienkautschuke erhalten werden, Isoprenkautschuk, Chloroprenkautschuk, Acrylkautschuke, wie Polybutylacrylat, Ethylen/Propylen-Copolymerkautschuk, Ethylen/Propylen/Dien-Terpolymere (EPDM) und Ethylen-Octen-Copolymerkautschuk. Dienkautschuke werden besonders bevorzugt.

Zu bevorzugten Beispielen für aromatische Vinylmonomere, die mit der modifizierenden Kautschukkomponente

pfropfpolymerisierbar sind, umfassen Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol und p-Methylstyrol. Styrol wird am stärksten bevorzugt, jedoch kann Styrol für die Copolymerisation in Kombination mit einem vorstehend erwähnten anderen aromatischen Vinylmonomeren eingesetzt werden.

Falls gewünscht, kann mindestens ein mit dem aromatischen Vinylmonomeren copolymerisierbares Comonomeres in das kautschukmodifizierte aromatische Vinylpolymere eingeführt werden. Um ein kautschukmodifiziertes aromatisches Vinylcopolymeres mit ausgezeichneter Ölbeständigkeit zu erhalten, kann als Comonomeres, das mit dem aromatischen Vinylmonomeren copolymerisierbar ist, ein ungesättigtes Nitrilmonomeres, wie Acrylnitril oder Methacrylnitril, verwendet werden. Außerdem kann zum Erniedrigen der Schmelzviskosität des aromatischen Vinylmonomeren ein Acrylat-Comonomeres mit einer Alkylgruppe mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen als Comonomeres eingesetzt werden. Zur Verbesserung der Wärmebeständigkeit der endgültigen Harzzusammensetzung können außerdem andere Comonomere, wie Acrylsäure, Methacrylsäure, Maleinsäureanhydrid und N-substituiertes Maleinimid oder dergleichen als Comonomeres verwendet werden. Außerdem kann die Wärmebeständigkeit der endgültigen Harzzusammensetzung auch unter Verwendung von  $\alpha$ -Methylstyrol als mindestens ein Teil des aromatischen Vinylmonomeren zur Herstellung des kautschukmodifizierten aromatischen Vinylcopolymeren verbessert werden.

Wenn das aromatische Vinylmonomere in Form eines Gemisches mit einem damit copolymerisierbaren Comonomeren eingesetzt wird, ist die Menge des Comonomeren in dem Gemisch (welches auf die modifizierende Kautschukkomponente pfropfpolymerisiert werden soll) im allgemeinen im Bereich von 0 bis 40 Gew.-%.

Erfindungsgemäß ist der Gehalt der zur Modifizierung dienenden Kautschukkomponente in dem kautschukmodifizierten aromatischen Vinylpolymeren vorzugsweise im Bereich von 5 bis 80 Gew.-%, stärker bevorzugt von 10 bis 50 Gew.-%. Der Gehalt der aromatischen Vinylpolymer-Komponente in dem

kautschukmodifizierten aromatischen Vinylpolymeren ist vorzugsweise im Bereich von 95 bis 20 Gew.-%, stärker bevorzugt von 90 bis 50 Gew.-%. Wenn das Verhältnis der zum Modifizieren dienenden Kautschukkomponente zu der aromatischen Vinylpolymer-Komponente in dem kautschukmodifizierten aromatischen Vinylpolymeren in dem vorstehend erwähnten Bereich liegt, kann gute Ausgewogenheit von Schlagfestigkeit und Steifigkeit für einen schließlich gebildeten Formkörper erreicht werden. Der durchschnittliche Durchmesser der Kautschukteilchen in dem kautschukmodifizierten aromatischen Vinylpolymeren beträgt vorzugsweise 0,1 bis 5,0  $\mu\text{m}$ , stärker bevorzugt 0,2 bis 3,0  $\mu\text{m}$ . Wenn der durchschnittliche Teilchendurchmesser der Kautschukteilchen innerhalb des oben-erwähnten Bereiches liegt, wird die Schlagfestigkeit des Formkörpers (der durch Verformen der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung erhalten wird) besonders verbessert.

Bei dem kautschukmodifizierten aromatischen Vinylpolymeren liegt die reduzierte Viskosität  $\eta_{sp}/C$  (gemessen in einer 0,5 g/dl-Lösung bei 30 °C), die einen Maßstab für das Molekulargewicht darstellt, vorzugsweise im Bereich von 0,30 bis 0,80 dl/g, stärker bevorzugt von 0,40 bis 0,60 dl/g, wobei, wenn das aromatische Vinylpolymere ein Polystyrolharz ist, Toluol als Lösungsmittel verwendet wird und wenn das aromatische Vinylpolymere ein ungesättigtes Nitril/aromatisches Vinyl-Copolymeres ist, Methylethylketon als Lösungsmittel verwendet wird. Bei der Herstellung des kautschukmodifizierten aromatischen Vinylpolymeren kann die reduzierte Viskosität  $\eta_{sp}/C$  durch Auswahl der Art und der Menge des Initiators, der Polymerisationstemperatur und der Menge des Kettenübertragungsmittels geregelt werden.

Speziell wenn es gewünscht ist, eine ausgezeichnete Wärmebeständigkeit und eine ausgezeichnete Ölbeständigkeit zu erreichen, wird bevorzugt, dass das oben erwähnte aromatische Vinylpolymere, das als von PC verschiedenes organisches Polymerharz verwendet wird, ein syndiotaktisches Styrolpolymeres ist, d. h. ein kristallines Styrolpolymeres. Im Vergleich mit

einem üblichen ataktischen Styrolpolymeren, welches amorph ist, besitzt ein syndiotaktisches Styrolpolymeres ausgezeichnete Wärmebeständigkeit und chemische Beständigkeit. Jedoch ist ein syndiotaktisches Styrolpolymeres spröde und hat schlechte Schlagfestigkeit. Die Bezeichnung "syndiotaktisches Styrolpolymeres" bedeutet ein Styrolpolymeres mit syndiotaktischer stereochemischer Struktur, d. h. einer stereochemischen Struktur, in der in der durch Kohlenstoff-Kohlenstoff-Bindungen gebildeten Hauptkette die Orientierungen der Phenylseitengruppen alternierend sind. Die Taktizität wird durch die kernmagnetische Resonanz-Methode bestimmt, wobei das Kohlenstoffisotop  $^{13}\text{C}$  nachgewiesen wird ( $^{13}\text{C}$ -NMR-Methode).

Zu Beispielen für aromatische Vinylpolymere gehören Polystyrol, Poly(alkylstyrol), Poly(halogeniertes Styrol), Poly(alkoxystyrol), Poly(vinylbenzoesäure) und Gemische dieser und Copolymere, welche die vorstehenden aromatischen Vinylmonomeren als Hauptkomponenten enthalten. Zu Beispielen für Poly(alkylstyrol) gehören Poly(methylstyrol), Poly(ethylstyrol), Poly(isopropylstyrol), Poly(tert.-Butylstyrol) und dergleichen. Zu Beispielen für Poly(halogenierte) Styrole gehören Poly(chlorstyrol), Poly(bromstyrol), Poly(fluorstyrol) und dergleichen. Beispiele für Poly(alkoxystyrole) umfassen Poly(methoxystyrol), Poly(ethoxystyrol) und dergleichen. Besonders bevorzugt werden Polystyrol, Poly(p-methylstyrol), Poly(m-methylstyrol), (Poly(p-tert.-butylstyrol), Poly(p-chlorstyrol), Poly(m-chlorstyrol), Poly(p-fluorstyrol) und Copolymere von Styrol und p-Methylstyrol.

Unter aromatischen Vinylpolymeren werden ein HIPS (hochschlagfestes Polystyrol) und ein ABS (Acrylnitril/Butadien/Styrol-Copolymer)-Harz bevorzugt. Wenn als aromatisches Vinylpolymeres HIPS verwendet wird, wird im Hinblick auf die Verbesserung der Verträglichkeit von HIPS mit einem aromatische Polycarbonat bevorzugt, dass ein Styrolcopolymeres als Mittel zum Verbessern der Verträglichkeit eingesetzt wird. So wird beispielsweise

28.08.00

- 20 -

bevorzugt, das in der WO 95-35346 beschriebene Styrol-Copolymere als die Verträglichkeit verbesserndes Mittel (Kompatibilisierungsmittel) einzusetzen.

Spezifische Beispiele für Polyphenylenether (nachstehend häufig als "PPE" bezeichnet), die in dem Harzgemisch als Harzkomponente (A) verwendet werden können, umfassen Poly(2,6-dimethyl-1,4-phenylenether), ein Copolymeres von 2,6-Dimethylphenol und 2,3,6-Trimethylphenol und dergleichen. Unter diesen wird Poly(2,6-dimethyl-1,4-phenylenether) bevorzugt. Die Methode zur Herstellung eines solchen PPE ist nicht speziell beschränkt. So kann beispielsweise PPE in einfacher Weise durch das Verfahren hergestellt werden, das in dem US-Patent 3 306 874 beschrieben ist. Dabei wird beispielsweise 2,6-Xylenol der oxidativen Polymerisation unterworfen, wobei als Katalysator ein Komplex eines Kupfer (I)-Salzes und eines Amins verwendet wird. Außerdem kann PPE leicht mit Hilfe anderer Methoden hergestellt werden, wie sie beispielsweise in den US-Patenten 3 306 875, 3 257 357 und 3 257 358, der nach der Prüfung veröffentlichten japanischen Patentanmeldung 52-17880 und der ungeprüften veröffentlichten japanischen Patentanmeldung 50-51197 beschrieben sind. Die reduzierte Viskosität  $\eta_{sp}/C$  (gemessen in einer 0,5 g/dl-Lösung in Chloroform bei 30 °C) des erfindungsgemäß verwendeten PPE liegt vorzugsweise im Bereich von 0,20 bis 0,70 dl/g, stärker bevorzugt von 0,30 bis 0,60 dl/g. Als Methode zum Erreichen des oben beschriebenen Bereiches der reduzierten Viskosität des Polyphenylenethers kann eine Methode erwähnt werden, bei der die Menge des bei der Produktion des Polyphenylenethers verwendeten Katalysators in geeigneter Weise gewählt wird.

Als bevorzugte Beispiele für Olefinpolymere, die als von PC verschiedenes organisches Polymerharz in dem Harzgemisch als Harzkomponente (A) verwendet werden können, lassen sich Propylenpolymere erwähnen. Zu Beispielen für Propylenpolymere gehören isotaktische Polypropylene (isotaktische Homopolymere von Propylen) und isotaktische Copolymere (einschließlich

Blockcopolymeren und regellose Copolymeren) von Propylen mit einem  $\alpha$ -Olefin, wie Ethylen, 1-Buten, 1-Penten oder 1-Hexen.

Als besonders bevorzugtes Beispiel für Olefinpolymere ist ein teilweise oder vollständig vernetztes thermoplastisches Polymeres zu nennen, welches erhalten wird, indem ein Gemisch einer vernetzbaren Kautschukkomponente und eines Olefinpolymeren einer dynamischen Vernetzungsbehandlung unterworfen wird, bei der das Gemisch in Gegenwart beispielsweise eines Vernetzungsmittels und eines Hilfsvernetzungsmittels in der Schmelze geknetet wird.

Beispiele für vernetzbare Kautschukkomponenten umfassen Ethylen/ $\alpha$ -Olefin-Copolymeren und hydrierte Dienkautschuke.

Unter Ethylen/ $\alpha$ -Olefin-Copolymeren wird ein Copolymeres von Ethylen mit einem  $C_3$ - $C_{20}$ - $\alpha$ -Olefin bevorzugt. Besonders bevorzugt wird ein mit Hilfe eines Metallocenkatalysators hergestelltes Ethylen/ $C_6$ - $C_{12}$ - $\alpha$ -Olefin-Copolymeres, weil ein solches Copolymeres eine schmale Molekulargewichtsverteilung hat.

Andererseits wird unter hydrierten Dienkautschuken ein hydrierter Dienkautschuk, der ein regelloses Copolymeres darstellt, in welchem 50 % oder mehr aller Doppelbindungen der Dienmonomereinheiten hydriert sind, bevorzugt. Es wird stärker bevorzugt, dass der hydrierte Dienkautschuk ein regelloses Copolymeres ist, in welchem 90 % oder mehr aller Doppelbindungen der Dien-Monomereinheiten hydriert sind und in dem die Anteile an nicht hydrierten 1,2-Vinylbindungen und nicht hydrierten 1,4-Bindungen nicht größer als 5 % bzw. nicht größer als 5 %, bezogen auf alle Doppelbindungen der Dien-Monomereinheiten sind. Der Dienkautschuk kann aromatische Vinylmonomereinheiten enthalten.

Wenn in dem Harzgemisch als von dem aromatischen Polycarbonat (PC) verschiedenes organisches Polymerharz als Komponente (A) ein Kautschukpolymeres verwendet wird, wird bevorzugt, dass das Kautschukpolymere eine Glasübergangstemperatur ( $T_g$ ) von  $-30^\circ\text{C}$  oder darunter hat. Wenn das Kautschukpolymere eine Glasübergangstemperatur oberhalb  $-30^\circ\text{C}$

28.08.00

- 22 -

hat, kann in manchen Fällen die Verbesserung der Schlagfestigkeit unbefriedigend sein.

Zu Beispielen für geeignete Kautschukpolymere gehören Dienkautschuke, wie Polybutadien, Poly(styrol-butadien) und Poly(acrylnitril-butadien), gesättigte Kautschuke, die durch Hydrieren der vorstehend erwähnten Dienkautschuke erhalten werden, Isoprenkautschuk, Chloroprenkautschuk, Acrylkautschuke, wie Polybutylacrylat, Ethylen/Propylen-Copolymerkautschuk, Ethylen/Propylen/Dien-Terpolymere (EPDM) und Ethylen/Octen-Copolymerkautschuk (jeweils in Form eines vernetzten oder nicht vernetzten Kautschuks) und thermoplastische Elastomere, die mindestens eines der oben aufgezählten Kautschukpolymeren enthalten. Unter den vorstehend genannten thermoplastischen Elastomeren wird ein thermoplastisches, aromatisches Vinyl-Elastomeres speziell bevorzugt. Zu Beispielen für solche thermoplastischen aromatischen Vinyl-Elastomeren gehören Blockcopolymere, die aus aromatischen Vinylmonomereinheiten und konjugierten Dienmonomereinheiten bestehen und hydrierte oder epoxidierte Blockcopolymere, die durch partielle Hydrierung oder partielle Epoxidierung der konjugierten Dieneinheit der vorstehend genannten Blockcopolymere erhalten werden. Durch Zugabe der oben erwähnten thermoplastischen Elastomeren zu Polycarbonat kann das Problem gelöst werden, dass ein Formkörper großer Dicke, der aus PC hergestellt ist, geringe Schlagfestigkeit hat. In diesem Fall kann die Schlagfestigkeit durch Zugabe des oben erwähnten Styrol-Copolymeren als Mittel zum Verbessern der Verträglichkeit weiter erhöht werden.

Beispiele für aromatische Vinylmonomere, die zur Ausbildung der aromatischen Vinylmonomereinheiten in den vorstehend erwähnten Blockcopolymeren geeignet sind, umfassen Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, p-Methylstyrol, p-Chlorstyrol, p-Bromstyrol, 2,4,5-Tribromstyrol und dergleichen. Styrol wird am stärksten bevorzugt, jedoch kann Styrol auch mit anderen



der oben erwähnten aromatischen Vinylmonomeren copolymerisiert werden.

Als Beispiele für konjugierte Dienmonomere, die zur Ausbildung von konjugierten Dienmonomereinheiten in dem vorstehend genannten Blockcopolymeren geeignet sind, können 1,3-Butadien, Isopren und dergleichen genannt werden.

Im Hinblick auf die Blockkonfiguration des oben erwähnten Blockcopolymeren wird bevorzugt, dass das Blockcopolymer ein lineares Blockcopolymeres mit einer Konfiguration beispielsweise  $SB$ ,  $S(BS)_n$  (worin  $n$  eine ganze Zahl von 1 bis 3 bedeutet) oder  $S(BSB)_n$  (worin  $n$  eine ganze Zahl von 1 oder 2 bedeutet) oder ein sternförmiges Blockcopolymeres mit einer Konfiguration  $(SB)_nX$  ist, wobei die B-Einheiten den Bereich des Bindungszentrums binden. In  $(SB)_nX$  bedeutet  $n$  eine ganze Zahl von 3 bis 6. In den vorstehenden Konfigurationen stellt  $S$  einen Polymerblock aus aromatischen Vinylmonomereinheiten dar,  $B$  stellt einen Polymerblock aus konjugierten Dienmonomereinheiten und/oder ein partielles Hydrierungsprodukt davon dar,  $X$  bedeutet den Rest eines Kupplungsmittels (beispielsweise Siliciumtetrachlorid, Zinntetrachlorid oder einer Polyepoxyverbindung). Unter diesen werden lineare Blockcopolymeres mit einer Diblockkonfiguration "SB", einer Triblockkonfiguration "SBS" und einer Tetrablockkonfiguration "SBSB" bevorzugt.

Wenn gewünscht wird, dass die erfindungsgemäße Zusammensetzung eine besonders hohe Schmelzfluidität aufweist, wird bevorzugt, ein thermoplastisches Harz als von PC verschiedenes organisches Polymeres als Komponente (A) in dem Harzgemisch zu verwenden. Zu Beispielen für solche thermoplastische Harze gehören Polybutylenterephthalat, Polyethylenterephthalat, thermoplastische Epoxypolymere und Polyamide.

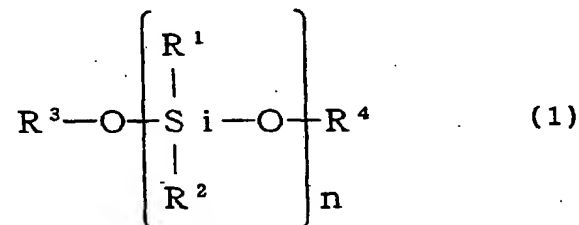
Zu Beispielen für thermisch härtende Harze, die als Komponente (A) in dem Harzgemisch als von PC verschiedenes organisches Polymerharz verwendet werden können, gehören

Phenolharze, Aminharze, Melaminharze, Imidharze und Epoxyharze.

Es wird bevorzugt, dass das von PC verschiedene organische Polymerharz ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts von 50.000 bis 1.000.000, vorteilhafter von 100.000 bis 500.000, hat.

Als speziell bevorzugtes Beispiel für Harzgemische als Harzkomponente (A) kann ein Gemisch aus PC und einem aromatischen Vinylpolymeren erwähnt werden.

Die aromatische Gruppen enthaltende Siliconverbindung (B) umfasst ein Monomeres, ein Polymeres oder ein Gemisch dieser, welche durch die nachstehende Formel (1) dargestellt sind:



in der

jedes von R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> unabhängig ein Wasserstoffatom oder eine einwertige C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>-Kohlenwasserstoffgruppe darstellt,

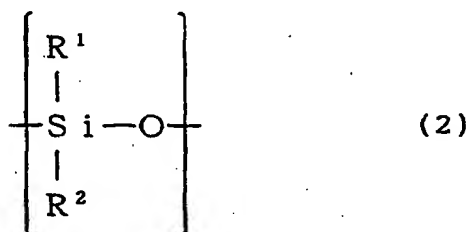
jedes von R<sup>3</sup>- und R<sup>4</sup> unabhängig ein Wasserstoffatom oder eine einwertige oder zweiwertige C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>-Kohlenwasserstoffgruppe bedeutet, wobei dann, wenn jedes von R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> unabhängig eine zweiwertige C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>-Kohlenwasserstoffgruppe darstellt, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> unter Bildung eines Rings aneinander gebunden sind,

mindestens eines von R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> und R<sup>4</sup> eine C<sub>6</sub>-C<sub>20</sub>-aromatische Gruppe mit einer Wertigkeit entsprechend der Definition von R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup> oder R<sup>4</sup> ist und

n für 1 oder mehr steht und den Zahlenmittel-n-Wert

bedeutet,

wobei das Polymere als Komponente (B) mehrere wiederkehrende Einheiten umfasst, die jeweils durch die nachstehende Formel (2) dargestellt sind:



worin jedes von  $R^1$  und  $R^2$  wie für Formel (1) definiert ist, und

endständige  $R^3$ - und  $R^4$ -Gruppen aufweist, wobei jedes von  $R^3$  und  $R^4$  wie für Formel (1) definiert ist,

wobei die durch Formel (2) dargestellten wiederkehrenden Einheiten gleich oder verschieden sind, so dass das als Komponente (B) vorliegende Polymere ein Homopolymeres oder ein Copolymeres sein kann, wobei das Copolymeres regellose, Block- oder alternierende Konfiguration hat, und

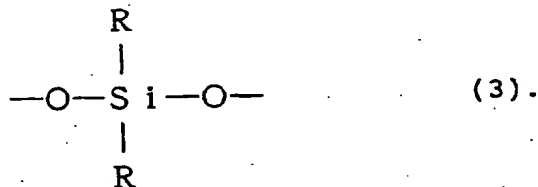
wobei die Komponente (B) die aromatische Gruppe in einer Menge von 5 bis 100 Mol-%, bezogen auf die gesamte molare Menge von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$ , enthält.

Bevorzugte Beispiele für nicht aromatische Kohlenwasserstoffgruppen, die in Komponente (B) enthalten sein können, umfassen die Methylgruppe, die Ethylgruppe und die Butylgruppe. Stärker bevorzugt wird die Methylgruppe.

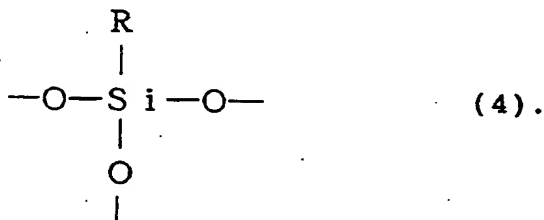
Es wird bevorzugt, dass die in Komponente (B) vorliegende aromatische Gruppe eine Phenylgruppe ist.

Komponente (B) ist eine mindestens eine aromatische Gruppen enthaltende Siliconverbindung, die aus der aus aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit linearer Konfiguration und aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit cyclischer Konfiguration bestehenden Gruppe ausgewählt ist. Komponente (B) besteht aus Einheiten

D, die in dem "Silicone Handbook", herausgegeben von Kunio Ito, Verlag The Nikkan Kogyo Shimbun Ltd., Japan (1990) beschrieben sind, worin die Einheit D eine bifunktionelle Einheit ist, die durch die folgende Formel (3) dargestellt wird:



Die erfindungsgemäß als Komponente (B) verwendete Siliconverbindung enthält keine Einheit, die eine verzweigte Struktur oder eine vernetzte Struktur ausbildet. Wenn Komponente (B) eine Siliconverbindung mit einer verzweigten Struktur oder einer vernetzten Struktur enthält, kann Komponente (B) der Harzkomponente (A) keine zufriedenstellend verbesserte Flammhemmung verleihen. Als Beispiel für Einheiten, die eine verzweigte Struktur oder eine vernetzte Struktur ausbilden, können die Einheiten T erwähnt werden, die in dem vorstehend erwähnten "Silicone Handbook" beschrieben sind, wobei die Einheit T eine trifunktionelle Einheit ist, die durch die folgende Formel (4) dargestellt ist:



28.08.00

- 27 -

Der Anteil der Komponente (B) in der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung beträgt 0,1 bis 100 Gew.-Teile, vorzugsweise 0,1 bis 10 Gew.-Teile, stärker bevorzugt 1 bis 5 Gew.-Teile, bezogen auf 100 Gew.-Teile der Harzkomponente (A).

Es ist erforderlich, dass Komponente (B) die aromatische Gruppe in einem Anteil von 5 bis 100 Mol-%, bezogen auf den gesamten molaren Anteil von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$ , enthält. Vorzugsweise enthält Komponente (B) die aromatische Gruppe in einem Anteil von 10 bis 90 Mol-%, stärker bevorzugt von 20 bis 90 Mol-%, und am vorteilhaftesten von 30 bis 90 Mol-%, bezogen auf die gesamte molare Menge von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$ .

Vorzugsweise ist n in der obigen Formel (1) 10 oder mehr, vorteilhafter 100 oder mehr.

Die als Komponente (B) vorliegende aromatische Gruppen enthaltende Siliconverbindung zeigt vorzugsweise eine kinematische Viskosität von 100 Centistokes oder mehr, stärker bevorzugt 300 Centistokes oder mehr, am stärksten bevorzugt 1.000 Centistokes oder mehr, gemessen bei 25 °C entsprechend JIS-K2410. Wenn die kinematische Viskosität der Komponente (B) weniger als 100 Centistokes ist, ist es möglich, dass Komponente (B) flüchtig wird. Für die obere Grenze der kinematischen Viskosität von Komponente (B) existiert keine spezielle Beschränkung. Die kinematische Viskosität von Komponente (B) kann den meßbaren Höchstwert (1.000.000 Centistokes) überschreiten und somit kann Komponente (B) gummiartig werden.

Komponente (B) kann ein Gemisch aus mehreren Siliconverbindungen umfassen, deren jede die erfindungsgemäßen Erfordernisse erfüllt. Wenn Komponente (B) ein Gemisch aus mehreren Siliconverbindungen umfasst, wird bevorzugt, dass Komponente (B) ein Gemisch aus einer Siliconverbindung, welche die aromatische Gruppe in einem Anteil von 5 bis weniger als 50 Mol-%, bezogen auf die gesamte molare Menge von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$ , enthält, und einer Siliconverbindung, welche die aromatische Gruppe in einer

28.08.00

- 28 -

Menge von 50 Mol-% oder mehr, bezogen auf die gesamte molare Menge von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  enthält, umfasst. Als Komponente (B) ist eine Siliconverbindung, welche die aromatische Gruppe in einer Menge von 50 Mol-% oder mehr, bezogen auf die gesamte molare Menge von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$ , enthält, sehr vorteilhaft zum Erreichen der erfindungsgemäßen ausgezeichneten Wirkungen, diese Siliconverbindung ist jedoch relativ teuer. Im Hinblick auf die Wirtschaftlichkeit enthält daher vorzugsweise Komponente (B) ein Gemisch der vorstehend erwähnten Siliconverbindung, welche die aromatische Gruppe in einer Menge von 5 bis weniger als 50 Mol-% enthält und der vorstehend erwähnten Siliconverbindung, welche die aromatische Gruppe in einem Anteil von 50 Mol-% oder mehr enthält.

Die erfindungsgemäße Harzzusammensetzung kann außerdem 0,001 bis 100 Gew.-Teile eines flammhemmenden Mittels (C) enthalten.

Als flammhemmendes Mittel (C) kann mindestens eines verwendet werden, das aus der Gruppe ausgewählt ist, die aus siliciumhaltigen Flammschutzmitteln, die von der Siliconverbindung (B) verschieden sind, Metallsalz-Flammschutzmitteln, halogenhaltigen Flammschutzmitteln, Phosphor enthaltenden Flammschutzmitteln, Stickstoff enthaltenden Flammschutzmitteln, anorganischen Flammschutzmitteln, faserigen Flammschutzmitteln und kohlebildenden Mitteln besteht. Unter diesen Flammschutzmitteln bzw. flammhemmenden Mitteln besonders bevorzugt sind ein siliciumhaltiges flammhemmendes Mittel, das von der Siliconverbindung (B) verschieden ist, ein flammhemmendes Metallsalz, ein phosphorhaltiges flammhemmendes Mittel, ein stickstoffhaltiges flammhemmendes Mittel und ein anorganisches flammhemmendes Mittel.

As das vorstehend erwähnte Silicium enthaltende flammhemmende Mittel, das von der Siliconverbindung (B) verschieden ist, können beispielsweise Polyorganosiloxane (z. B. Silicone und Organosilicate), die von der

Siliconverbindung (B) verschieden sind, und Siliciumdioxid verwendet werden.

Polyorganosiloxane werden in Abhängigkeit von ihrer Zustandsform in Öle, Harze und Kautschuke unterteilt. Ein Polyorganosiloxan, das als siliciumhaltiges flammhemmendes Mittel (C) (das verschieden von der Siliconverbindung (B) ist) gemäß der Erfindung verwendet werden kann, ist ein Polyorganosiloxan, das mindestens eine Art von Einheiten enthält, die aus der Gruppe der Einheiten ausgewählt ist, die in dem oben erwähnten "Silicone Handbook" beschrieben sind, beispielsweise mindestens eine Art einer Einheit, die aus der Gruppe ausgewählt ist, welche aus M-Einheiten, die monofunktionell sind und durch die Formel  $R_3SiO_{1/2}$  dargestellt werden, den vorstehend erwähnten D-Einheiten, die bifunktionell sind, den vorstehend erwähnten T-Einheiten, die trifunktionell sind, Einheiten Q, die tetrafunktionell sind und durch die Formel  $SiO_2$  dargestellt sind, Einheiten X, welche eine Alkoxygruppe oder eine Aryloxygruppe enthalten und durch die Formel  $R(RO)SiO_{2,0}$  dargestellt sind und Einheiten Y, welche durch die Formel  $(RO)_2SiO_{3,0}$  dargestellt sind (worin R eine Kohlenwasserstoffgruppe mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen bedeutet), vorausgesetzt dass dann, wenn das Polyorganosiloxan nur D-Einheiten enthält, das Polyorganosiloxan einen Gehalt an aromatischen Gruppen von weniger als 5 Mol-%, bezogen auf die gesamte molare Menge aller Gruppen R, hat. Ein solches Polyorganosiloxan, welches als siliciumhaltiges flammhemmendes Mittel (C) verwendet werden kann, ist ein öliges Polyorganosiloxan mit verzweigter Struktur oder ein Siliconharz mit dreidimensional vernetzter Struktur. Ein kautschukartiges Polyorganosiloxan wird beispielsweise durch Vulkanisieren eines gummiartigen linearen Polydiorganosiloxans mit hohem Molekulargewicht erhalten.

Als flammhemmendes Mittel (C) können auch Modifizierungsprodukte der vorstehend genannten Polyorganosiloxane und Verbundmaterialien verwendet werden,

die durch Kombinieren der vorstehend erwähnten Polyorganosiloxane mit anderen Substanzen erhalten werden. Zu Beispielen für Modifizierungsprodukte gehören Produkte, die durch Modifizieren der vorstehend genannten Polyorganosiloxane mit modifizierenden Gruppen, wie einer Epoxygruppe, einer Aminogruppe, einer Mercaptogruppe und einer Methacrylgruppe erhalten werden. Zu Beispielen für Verbundmaterialien gehören Polycarbonat-Silicon-Copolymere und Acrylkautschuk-Silicon-Komposite.

Die oder jede Gruppe R in dem als flammhemmendes Mittel (C) geeigneten erwähnten Polyorganosiloxan ist eine Kohlenwasserstoffgruppe mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen. Bevorzugte Beispiele für solche Kohlenwasserstoffgruppen umfassen die Methylgruppe, die Ethylgruppe, die Butylgruppe, die Phenylgruppe und die Benzylgruppe. Stärker bevorzugt sind die Methylgruppe und die Phenylgruppe. Im Fall eines Polyorganosiloxans, das eine tri- oder höher funktionelle Einheit enthält, wird bevorzugt, dass das Polyorganosiloxan eine Phenylgruppe in einem Anteil von 5 bis 100 Mol-%, bezogen auf die gesamte molare Menge aller Gruppen R, enthält. Ein solches Polyorganosiloxan als flammhemmendes Mittel (C) ist vorteilhaft nicht nur wegen seiner ausgezeichneten Verträglichkeit mit einem aromatischen Polymerharz, wie PC, sondern auch deshalb, weil es die Wasserbeständigkeit und Wärmebeständigkeit der Harzzusammensetzung verbessert. Siliciumdioxid, welches als von der Siliconverbindung (B) verschiedenes Silicium enthaltende Flammenschutzmittel verwendbar ist, ist amorphes Siliciumdioxid. Speziell bevorzugt wird Siliciumdioxid, das mit einer Kohlenwasserstoffverbindung überzogen ist (welches durch Behandlung der Oberfläche von Siliciumdioxid mit einem Silan-Kupplungsmittel, das aus einem Silan und einer an dieses gebundenen Kohlenwasserstoffverbindung besteht, erhalten wird). Stärker bevorzugt wird Siliciumdioxid, welches mit einer Vinylgruppen enthaltenden Kohlenwasserstoffverbindung überzogen ist.



Zu Beispielen für Silan-Kupplungsmittel gehören Vinylgruppen enthaltend Silane, wie p-Styryltrimethoxysilan, Vinyltrichlorsilan, Vinyltris( $\beta$ -methoxyethoxy)silan, Vinyltriethoxysilan, Vinyltrimethoxysilan und  $\gamma$ -Methacryloxypropyltrimethoxysilan, Epoxysilane, wie  $\beta$ -(3,4-Epoxycyclohexyl)ethyltrimethoxysilan,  $\gamma$ -Glycidoxypropyltrimethoxysilan und  $\gamma$ -Glycidoxypropyltriethoxysilan und Aminosilane, wie N- $\beta$ -(Aminoethyl)- $\gamma$ -aminopropyltrimethoxysilan, N- $\beta$ -(Aminoethyl)- $\gamma$ -aminopropylmethyldimethoxysilan,  $\gamma$ -Aminopropyltriethoxysilan und N-Phenyl- $\gamma$ -aminopropyltrimethoxysilan.

Unter diesen werden Silan-Kupplungsmittel bevorzugt, die eine Struktureinheit aufweisen, welche der eines verwendeten thermoplastischen Harzes ähnlich ist. Wenn beispielsweise als thermoplastisches Harz ein Styrolpolymeres verwendet wird, ist p-Styryltrimethoxysilan geeignet.

Die Methoden zur Behandlung von Siliciumdioxid mit einem Silan-Kupplungsmittel lassen sich grob in eine Nassmethode und in eine Trockenmethode unterteilen. Bei der Nassmethode wird Siliciumdioxid in eine Lösung eines Silan-Kupplungsmittels eingetaucht und danach getrocknet. Bei der Trockenmethode wird Siliciumdioxid in eine Vorrichtung eingeführt, die zum Hochgeschwindigkeitsrühren befähigt ist (beispielsweise einen Henschel-Mischer) und eine Lösung eines Silankupplungsmittels wird allmählich unter Rühren in das eingefüllte Siliciumdioxid eingetropft, wonach eine Wärmebehandlung erfolgt.

Es wird bevorzugt, dass das als flammhemmendes Mittel (C) vorliegende flammhemmende Metallsalz ein Metallsalz einer organischen Schwefelverbindung ist. Beispiele für organische Schwefelverbindungen umfassen Metallsalze von organischen Sulfonsäuren, wie Kaliumtrichlorbenzolsulfonat, Kaliumperfluorbutansulfonat, Kaliumdiphenylsulfon-3-sulfonat und dergleichen.

28.08.00

- 32 -

Weitere Beispiele für Metallsalze als flammhemmende Mittel umfassen Metallsalze von aromatischen Sulfonylimiden und Metallsalz enthaltende aromatische organische Polymere mit einer Struktur, in der eine Metallsalzgruppe der Sulfonsäure, Schwefelsäure, Phosphorsäure oder Borsäure an den aromatischen Ring eines aromatischen organischen Polymeren, wie eines aromatischen Vinylpolymeren, eines Polyphenylenethers oder dergleichen gebunden ist. Als Metalle dieser Metallsalze eignen sich Alkalimetalle oder Erdalkalimetalle.

Wenn ein durch Formen der Harzzusammensetzung, die das Metallsalz-Flammschutzmittel (C) enthält, erhaltener Formkörper zu brennen beginnt, beschleunigt das Metallsalz-Flammschutzmittel die Decarboxylierungsreaktion und verbessert damit die flammhemmende Wirkung.

Unter den vorstehend erwähnten Metallsalz enthaltenden aromatischen organischen Polymeren ist ein aromatisches organisches Polymeres, welches das Metallsalz einer Sulfonsäure enthält, speziell bevorzugt. Wenn ein durch Formen der Harzzusammensetzung, die als flammhemmendes Mittel (C) ein aromatisches organisches Polymeres enthält, welches eine Sulfonsäure-Metallsalzgruppe aufweist, erhaltener Formkörper zu brennen beginnt, wirkt das Sulfonsäure-Metallsalz als Reaktionszentrum zur Vernetzung und trägt damit stark zur Bildung eines Films eines Carbonisierungsprodukts bei.

Zu Beispielen für halogenhaltige Flammschutzmittel als flammhemmendes Mittel (C) gehören Bisphenolhalogenide, aromatische Halogenverbindungen, halogenierte Polycarbonate, halogenierte aromatische Vinylpolymere, Cyanurat-Halogenid enthaltende Harze und halogenierte Polyphenylenether. Unter diesen werden Decabromdiphenyloxid, Tetrabrombisphenol A, Oligomere von Tetrabrombisphenol A, Bisphenolbromid enthaltende Phenoxyharze, Bisphenolbromid enthaltende Polycarbonate, Polystyrolbromide, vernetzte Polystyrolbromide, Polyphenylenoxid-bromide, Polydibromphenylenoxid, Kondensationsprodukte von

Decabromdiphenyloxid und einem Bisphenol, Halogen enthaltende Phosphate, Fluorharze und dergleichen bevorzugt.

Zu Beispielen für Phosphor enthaltende flammhemmende Mittel gehören organische Phosphorverbindungen, roter Phosphor, anorganische Phosphate und dergleichen.

Beispiele für organische Phosphorverbindungen umfassen Phosphine, Phosphinoxide, Bisphosphine, Phosphoniumsalze, Phosphinsäuresalze, Phosphorsäureester und Phosphorigsäureester. Zu spezifischeren Beispielen für organische Phosphorverbindungen gehören Triphenylphosphat, Methylneopentylphosphit, Pentaerythrit-diethyl-diphosphit, Methyl-neopentylphosphonat, Phenyl-neopentylphosphat, Pentaerythrit-diphenyl-diphosphat, Dicyclopentyl-hypodiphosphat, Dineopentylhypophosphit, Phenylbrenzkatechin-phosphit, Ethylbrenzkatechin-phosphat und Dibrenzkatechin-hypodiphosphat.

Im Hinblick auf die organische Phosphorverbindung wird bevorzugt, einen monomeren aromatischen Phosphorsäureester und einen oligomeren aromatischen Phosphorsäureester zu verwenden.

Als der erwähnte monomere aromatische Phosphorsäureester wird speziell ein Hydroxylgruppen enthaltender monomerer aromatischer Phosphorsäureester bevorzugt, der in der US-Patentschrift 5,278,212 beschrieben ist, wie monomere aromatische Phosphorsäureester, die durch Einführen mindestens einer phenolischen Hydroxygruppe in Tricresylphosphat oder Triphenylphosphat erhalten werden. Außerdem bevorzugt wird ein monomerer aromatischer Phosphorsäureester, der eine langkettige Alkylkette enthält, und der in der internationalen Patentveröffentlichung WO 96/27637 beschrieben ist, wie Tris(nonylphenyl)-phosphat. Als die erwähnten oligomeren aromatischen Phosphorsäureester werden Bisphenol A-bis(diphenylphosphat), Bisphenol A-bis(dicresylphosphat), Resorcin-bis(diphenylphosphat) und dergleichen bevorzugt.

Auch die oligomeren aromatischen Phosphorsäureester, die durch das in der ungeprüften japanischen Patentveröffentlichung 5-1079 beschriebene Verfahren hergestellt werden,

sind als die erwähnten organischen Phosphorverbindungen bevorzugt. Als Beispiel für eine solche Verbindung als phosphorhaltiges Flammenschutzmittel kann ein oligomerer aromatischer Phosphorsäureester erwähnt werden, der mit Hilfe eines Verfahrens erhalten wird, bei dem ein 2,6-disubstituiertes einwertiges Phenol in Gegenwart einer Lewis-Säure als Katalysator mit einem Phosphoroxyhalogenid unter Bildung eines Diarylphosphorhalogenids umgesetzt wird und danach das erhaltene Diarylphosphorhalogenid mit einem bifunktionellen Phenol in Gegenwart einer Lewis-Säure als Katalysator umgesetzt wird.

Beispiele für den roten Phosphor, der als Phosphor enthaltendes Flammenschutzmittel eingesetzt wird, umfassen nicht nur gewöhnlichen roten Phosphor, sondern auch ein von rotem Phosphor abgeleitetes Produkt, in dem roter Phosphor mit einem Film aus mindestens einem Metallhydroxid überzogen ist, das aus der aus Aluminiumhydroxid, Magnesiumhydroxid, Zinkhydroxid und Titanhydroxid bestehenden Gruppe ausgewählt ist. Als weitere Produkte des roten Phosphors können solche erwähnt werden, die durch Überziehen von rotem Phosphor mit einem Film aus einem Gemisch eines Metallhydroxids (ausgewählt unter Aluminiumhydroxid, Magnesiumhydroxid, Zinkhydroxid und Titanhydroxid) und einem thermisch härtenden Harz erhalten werden. Als weitere Produkte des roten Phosphors sind solche zu erwähnen, die durch Überziehen von rotem Phosphor mit einem Doppelschichtfilm erhalten werden, der einen aus Metallhydroxid bestehenden inneren Film (ausgewählt aus der aus Aluminiumhydroxid, Magnesiumhydroxid, Zinkhydroxid und Titanhydroxid bestehenden Gruppe) und einem äußeren Film aus einem thermisch härtenden Harz besteht.

Ein repräsentatives Beispiel für als Phosphor enthaltendes Flammenschutzmittel verwendete anorganische Phosphate ist Ammoniumpolyphosphat zu nennen.

Die vorstehend erwähnten Stickstoff enthaltenden Flammenschutzmittel können aus der aus Triazinverbindungen, Triazol-

verbindungen, Tetrazolverbindungen, Phosphazenverbindungen und Diazoverbindungen bestehenden Gruppe ausgewählt werden.

Zu spezifischen Beispielen für die erwähnten Triazinverbindungen gehören Melamin, Melam, Melem, Mellon (ein Produkt, das durch die Ammoniak-Abspaltungsreaktion aus Melem bei 600°C oder darüber erhalten wird, bei der drei Moleküle Ammoniak aus drei Molekülen Melem freigesetzt werden), Melamincyanurat, Melaminphosphat, Succinoguanamin, Adipoguanamin, Methylglutaroguanamin, Melaminharze und BT-Harze. Unter diesen ist Melamincyanurat bevorzugt, weil es weniger flüchtig ist.

Zu Beispielen für die erwähnten Triazolverbindungen gehören Triazol, Methyltriazol und Phenyltriazol.

Für die als Stickstoff enthaltendes Flammenschutzmittel verwendeten Phosphazenverbindungen existiert keine spezielle Beschränkung, solange die Verbindung eine Struktur hat, in der ein Phosphoratom durch eine Doppelbindung an ein Stickstoffatom gebunden ist. So wird beispielsweise die Phosphazenverbindung aus der aus cyclischen Phosphazenen und linearen Phosphazenen bestehenden Gruppe ausgewählt. Unter diesen Phosphazenverbindungen wird im Hinblick auf das Erzielen einer guten Verträglichkeit mit einem aromatischen Polycarbonat eine Phosphazenverbindung mit einer aromatischen Gruppe bevorzugt. Es wird außerdem bevorzugt, dass die Phosphazenverbindung ein lineares Phosphazen ist.

Zu Beispielen für cyclische Phosphazene gehören Propoxyphosphazene, Phenoxyphosphazene, Aminophosphazene und Fluoralkylphosphazene. Beispiele für lineare Phosphazene umfassen Polyarylphosphazene, wie Poly(diphenylphosphazen), Polydiaryloxyphosphazene, wie Poly(diphenoxyphosphazen), Poly(diaminophosphazen) und Poly(difluoralkylphosphazen). Diese Phosphazenverbindungen können erhalten werden, indem die entsprechende Chlorphosphazenverbindung einer Substitutionsreaktion mit einem Alkohol, einem Phenol oder dergleichen unterworfen wird.

Zu Beispielen für als Stickstoff enthaltende flammhemmende Mittel verwendbare Tetrazolverbindungen gehören 5-Phenyltetrazol, 5,5'-Bistetrazol-diammoniumsalz, 5,5'-Bistetrazol-diaminoguanidinsalz, 5,5'-Bistetrazol-piperazinsalz, Azobistetrazol-diguanidinsalz, Azobistetrazol-diaminoguanidinsalz und dergleichen.

Beispiele für die erwähnten Diazoverbindungen umfassen Azodicarbonamid, Azobisisobutyronitril, Diazoaminobenzol, Bariumazodicarboxylat und dergleichen.

Beispiels für anorganische Flammenschutzmittel als Flamm-  
schutzmittel (C) umfassen Aluminiumhydroxid, Magnesium-  
hydroxid, Dolomit, Hydrotalcit, Calciumhydroxid, Barium-  
hydroxid, basisches Magnesiumcarbonat, Zirkoniumhydroxid,  
Hydrate von anorganischen Metallverbindungen (wie Zinnoxid-  
hydrat), Metalloxide (wie Aluminiumoxid, Eisenoxid,  
Titanoxid, Manganoxid, Magnesiumoxid, Zirkoniumoxid,  
Zinkoxid, Molybdänoxid, Kobaltoxid, Wismutoxid, Chromoxid,  
Zinnoxid, Antimonoxid, Nickeloxid, Kupferoxid und  
Wolframoxid), Metallpulver (beispielsweise ausgewählt unter  
pulverförmigem Aluminium, Eisen, Titan, Mangan, Zink,  
Molybdän, Kobalt, Wismut, Chrom, Nickel, Kupfer, Wolfram,  
Zinn und Antimon), Zinkborat, Zinkmetaborat, Bariummetaborat,  
Zinkcarbonat, Magnesiumcarbonat, Calciumcarbonat,  
Bariumcarbonat und dergleichen. Diese Substanzen können  
einzeln oder in Kombination eingesetzt werden. Unter diesen  
kann als anorganisches flammhemmendes Mittel, welches nicht  
nur ausgezeichnete Flammhemmung verleihen kann, sondern auch  
wirtschaftlich vorteilhaft ist, mindestens eine Verbindung  
erwähnt werden, die aus der aus Magnesiumhydroxid, Aluminium-  
hydroxid, basisches Magnesiumcarbonat und Hydrotalcit  
bestehenden Gruppe ausgewählt ist.

Ein faserförmiges flammhemmendes Mittel wird als  
Flammenschutzmittel (C) verwendet, um das Abtropfen von  
brennenden Teilchen aus einem Formkörper zu vermeiden, wenn  
der Formkörper brennt. Um einer Harzzusammensetzung ein  
faserförmiges flammhemmendes Mittel einzuverleiben,

existieren zwei Methoden, nämlich eine Methode, bei der das faserförmige flammhemmende Mittel vor der Herstellung der Harzzusammensetzung produziert und danach zugesetzt und mit den Komponenten (A) und (B) schmelzgeknetet wird, und eine Methode, bei der ein nicht faserförmiges Ausgangsmaterial für das faserförmige flammhemmende Mittel zugesetzt und mit den Komponenten (A) und (B) schmelzgeknetet wird, wodurch bewirkt wird, dass das Material während des Schmelzknietens eine Faserform annimmt. Die Methoden für das Einbringen des faserförmigen flammhemmenden Mittels in die Harzzusammensetzung werden nachstehend erläutert, wobei als Beispiele eine Aramidfaser, eine Polyacrylnitrilfaser und eine Fluorharzfaser eingesetzt werden.

Es wird bevorzugt, dass die erwähnte Aramidfaser einen durchschnittlichen Durchmesser von 1 bis 500  $\mu\text{m}$  und eine durchschnittliche Faserlänge von 0,1 bis 10 mm hat. Die Aramidfaser kann mit Hilfe eines Verfahrens hergestellt werden, bei dem Isophthalamid oder Polyparaphenylenterephthalamid in einem ein Amid enthaltenden polaren Lösungsmittel oder in Schwefelsäure gelöst wird und die gebildete Lösung dann dem Trockenspinnen oder Naßspinnen unterworfen wird.

Für die erwähnte Polyacrylnitrilfaser als faserförmiges Flammenschutzmittel wird bevorzugt, dass der durchschnittliche Durchmesser 1 bis 500  $\mu\text{m}$  und die durchschnittliche Faserlänge 0,1 bis 10 mm betragen. Als Methode zur Herstellung einer Polyacrylnitrilfaser ist eine Trockenspinnmethode, in der ein Acrylnitrilpolymeres in einem Lösungsmittel (wie Dimethylformamid) gelöst wird und die gebildete Lösung unter einem Luftstrom bei 400°C versponnen wird, und ein Naßspinnverfahren zu erwähnen, bei dem ein Acrylnitrilpolymeres in einem Lösungsmittel (wie Salpetersäure) gelöst wird und die gebildete Lösung dem Verspinnen in Wasser unterworfen wird.

Das als erwähntes faserförmige Flammenschutzmittel verwendete Fluorharz ist ein Fluoratom enthaltendes Harz. Zu spezifischen Beispielen für Fluorharze gehören Polymono-

fluorethylen, Polydifluorethylen, Polytrifluorethylen, Polytetrafluorethylen und ein Tetrafluorethylen-Hexafluorpropylen-Copolymeres. Gewünschtenfalls kann ein Fluor enthaltendes Monomeres mit einem anderen Monomeren, das mit dem Fluor enthaltenden Monomeren copolymerisierbar ist, copolymerisiert werden.

Bezüglich des Verfahrens zur Herstellung eines Fluorharzes kann auf die US-Patentschriften 2 393 697 und 2 534 058 hingewiesen werden. So kann beispielsweise pulverförmiges Polytetrafluorethylen mit Hilfe eines Verfahrens erhalten werden, bei dem Tetrafluorethylen in einem wässrigen Medium bei einer Temperatur von 0 bis 200°C unter einem Druck von 7 bis 70 kg/cm<sup>2</sup> unter Verwendung eines radikalischen Initiators (wie Ammoniumpersulfat oder Kaliumpersulfat) polymerisiert wird und das gebildete Reaktionsgemisch (in Suspension, Dispersion oder als Emulsion) koaguliert oder ausgefällt wird.

Als Beispiele für Methoden, welche in dem erwähnten Fluorharz eine faserige Morphologie bewirken, sind folgende drei Methoden zu erwähnen. Gemäß einer ersten Methode (zweistufiges Verfahren) werden ein Fluorharz, ein thermoplastisches Harz und gegebenenfalls ein Dispergiermittel miteinander schmelzgeknetet, wobei ein Vorgemisch erhalten wird, und danach wird das erhaltene Vorgemisch zusammen mit einem thermoplastischen Harz und einem flammhemmenden Mittel schmelzgeknetet. Bei einer zweiten Methode (einstufiges Verfahren) wird ein Extruder mit einer ersten und einer zweiten Extrusionszone verwendet, dessen zweite Extrusionszone eine seitliche Zuführungsöffnung hat. Bei der zweiten Methoden werden ein Fluorharz, ein thermoplastisches Harz und gegebenenfalls ein Dispergiermittel in der ersten Extrusionszone miteinander schmelzgeknetet und danach in der zweiten Extrusionszone bei einer niedrigeren Temperatur als der Temperatur der ersten Extrusionszone schmelzgeknetet, während ein flammhemmendes Mittel durch die seitliche Zuführungsöffnung eingeführt wird. Bei einer dritten Methode



(einstufiges Verfahren) werden alle Bestandteile (einschließlich eines Fluorharzes) für die Harzzusammensetzung gleichzeitig durch die Hauptzufuhröffnung in einen Extruder eingegeben und schmelzgeknetet. Im Hinblick darauf, dass hohe Flammhemmung der endgültigen Harzzusammensetzung erzielt werden soll, wird das zweistufige Verfahren unter Bildung einer Vormischung bevorzugt.

Als flammhemmendes Mittel (C), welches als Kohle bildendes Mittel wirkt, kann ein Novolakharz eingesetzt werden. Das Novolakharz ist ein Phenol-Novolakharz, das erhalten werden kann, indem ein Phenol und ein Aldehyd einer Kondensationsreaktion in Gegenwart eines Säurekatalysators, wie Schwefelsäure oder Chlorwasserstoffsäure, unterworfen werden. Die Methode zur Herstellung eines Novolakharzes ist in "Kobunshi Jikkengaku 5, Jushukugo-to-Jufuka, Seiten 437 bis 455 (Experimental Polymer Chemistry, Serie 5, Polykondensation und Polyaddition)" beschrieben (herausgegeben von Kyoritsu Shuppan Co., Ltd., Japan).

Zu spezifischen Beispielen für zur Herstellung von Novolakharzen geeigneten Phenolen gehören Phenol, o-Cresol, m-Cresol, p-Cresol, 2,5-Dimethyl-, 3,5-Dimethyl-, 2,3,5-Trimethyl-, 3,4,5-Trimethyl-, p-t-Butyl-, p-n-Octyl-, p-Stearyl-, p-Phenyl-, p-(2-Phenylethyl)-, o-Isopropyl-, p-Isopropyl-, m-Isopropyl-, p-Methoxy- und p-Phenoxyphenol; Brenzkatechin, Resorcin, Hydrochinon, Salicylaldehyd, Salicylsäure, p-Hydroxybenzoesäure, Methyl-p-hydroxybenzoat, p-Cyan- und o-Cyanphenol, p-Hydroxybenzolsulfonsäure, p-Hydroxybenzolsulfonamid, Cyclohexyl-p-hydroxybenzolsulfonat, (4-Hydroxyphenyl)phenylphosphinsäure, Methyl(4-hydroxyphenyl)-phenylphosphinat, 4-Hydroxyphenylphosphonsäure, Ethyl-4-hydroxyphenylphosphonat und Diphenyl-4-hydroxyphenylphosphonat.

Spezifische Beispiele für zur Herstellung von Novolakharzen geeignete Aldehyde umfassen Formaldehyd, Acetaldehyd, n-Propanal, n-Butanal, Isobutylaldehyd, 3-

Methyl-n-butanal, Benzaldehyd, p-Tolylaldehyd und 2-Phenylacetaldehyd.

Die Menge des flammhemmenden Mittels (C) beträgt vorzugsweise 0,001 bis 100 Gew.-Teile, bevorzugt 1 bis 50 Gew.-Teile, stärker bevorzugt 3 bis 20 Gew.-Teile und am stärksten bevorzugt 5 bis 15 Gew.-Teile, bezogen auf 100 Gew.-Teile der Harzkomponente (A).

Gewünschtenfalls kann die erfindungsgemäße Harzzusammensetzung als Wahlbestandteil ein Verarbeitungshilfsmittel (D) enthalten. Als Verarbeitungshilfsmittel (D) kann mindestens ein Formtrennmittel oder ein Mittel zum Verbessern der Fließfähigkeit verwendet werden, das ausgewählt ist aus der aus aliphatischen Kohlenwasserstoffen, höheren Fettsäuren, höheren Fettsäureestern, höheren Fettsäureamiden, höheren aliphatischen Alkoholen, Metallseifen, Organosiloxanwachsen, Polyolefinwachsen und Polycaprolacton bestehenden Gruppe. Die Menge des Verarbeitungshilfsmittels (D) beträgt vorzugsweise 0,01 bis 20 Gew.-Teile, stärker bevorzugt 0,5 bis 10 Gew.-Teile, am stärksten bevorzugt 1 bis 5 Gew.-Teile, bezogen auf 100 Gew.-Teile der Harzkomponente (A).

Wenn die erfindungsgemäße Harzzusammensetzung hohe Lichtbeständigkeit aufweisen soll, kann die Harzzusammensetzung gegebenenfalls ein Mittel zum Verbessern der Lichtbeständigkeit (E) enthalten, das ausgewählt ist aus der aus Ultraviolett-Absorbern, sterisch gehinderten Aminen als Lichtstabilisator, Antioxidationsmitteln, Abfangmitteln für aktive Spezies, Sonnenschutzmitteln, Metall-Inaktivierungsmitteln und Lichtschwächungsmitteln bestehenden Gruppe. Die Menge des Mittels zum Verbessern der Lichtbeständigkeit (E) beträgt vorzugsweise 0,05 bis 20 Gew.-Teile, stärker bevorzugt 0,1 bis 10 Gew.-Teile und am meisten bevorzugt 1 bis 5 Gew.-Teile, bezogen auf 100 Gew.-Teile der Harzkomponente (A).

Als Beispiele für Methoden zur Herstellung der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung können folgende genannt werden:

eine Methode, bei der die Harzkomponente (A) mit der Komponente (B) vermischt wird und das erhaltene Gemisch mit Hilfe eines Extruders schmelzgeknetet wird,

eine Methode, bei der die Harzkomponente (A) in einem Extruder geschmolzen wird und Komponente (B) zu der geschmolzenen Harzkomponente (A) in dem Extruder gegeben wird und das gebildete Gemisch mit Hilfe des Extruders schmelzgeknetet wird, und

eine Methode, bei der durch Schmelzkneten der gesamten Harzkomponente (A) und eines Teils der Komponente (B) oder durch Schmelzkneten eines Teils der Harzkomponente (A) und der gesamten Komponente (B) eine Vormischung hergestellt wird und der restliche Anteil der Harzkomponente (A) oder der Komponente (B) und gegebenenfalls ein anderes Flammenschutzmittel als Komponente (B) zu der Vormischung zugesetzt wird, wonach das Gemisch schmelzgeknetet wird.

Als Extruder für die Schmelzextrusion wird vorzugsweise ein Doppelschneckenextruder eingesetzt. Für den Doppelschneckenextruder wird bevorzugt, dass das L/D-Verhältnis (Verhältnis der Länge L jeder Schnecke zu dem Innendurchmesser D des zylindrischen Teils des Extruders) 20 bis 50 beträgt. Es wird außerdem bevorzugt, dass der Doppelschneckenextruder mindestens zwei Zuführungsöffnungen aufweist, einschließlich eine Haupt-Zuführungsöffnung und eine Seiten-Zuführungsöffnung, und Knetzonen aufweist, die im Bereich zwischen den beiden oder mehreren Zuführungsöffnungen und in einem Bereich vorgesehen sind, der sich von einem Endteil des Extruders zu der Zuführungsöffnung erstreckt, die dem einen Endteil des Extruders benachbart ist, wobei jede der Knetzonen unabhängig eine Länge entsprechend 3D bis 10D hat.

Eine bevorzugte Ausführungsform der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung enthält:

100 Gew.-Teile der Harzkomponente (A), die aus einem aromatischen Polycarbonat oder aus einem Harzgemisch aus

einem aromatischen Polycarbonat und einem aromatischen Vinylpolymerharz besteht,

0,1 bis 100 Gew.-Teile der Komponente (B), die aus einem Methylphenylsilicon besteht, welches die vorstehenden erfindungsgemäß definierten Erfordernisse erfüllt,

0,001 bis 10 Gew.-Teile eines Flammenschutzmittels (C), das aus einem Metallsalz einer organischen Sulfonsäure (wie Kaliumdiphenylsulfon-3-sulfonat) und/oder einer Phosphazenenverbindung besteht, und

0,001 bis 10 Gew.-Teile eines Polytetrafluorethylens.

Diese Harzzusammensetzung hat ausgezeichnete Abstimmung der verschiedenen Eigenschaften, wie Flammhemmung, Eignung zum kontinuierlichen Formen, Formbarkeit (Schmelzfluidität), Schlagfestigkeit und Wärmebeständigkeit.

Die erfindungsgemäße Harzzusammensetzung kann beispielsweise durch Schmelzkneten der vorstehend erwähnten Komponenten unter Verwendung eines handelsüblichen Einschnecken- oder Doppelschneckenextruders hergestellt werden. Bei der Herstellung der Harzzusammensetzung können außer den vorstehend erwähnten Komponenten auch andere Additive zugesetzt werden. Zu Beispielen für Additive gehören Wärmestabilisatoren, Gleitmittel, Füllstoffe, Verstärkungsmittel, wie Glasfasern und Farbmittel, wie Farbstoffe und Pigmente.

Die in der oben beschriebenen Weise erhaltene erfindungsgemäße Harzzusammensetzung kann dem kontinuierlichen Formen während langer Dauer unterworfen werden, was beispielsweise unter Verwendung einer Spritzgußmaschine oder einer Extrusions-Formmaschine erfolgen kann. Das gebildete geformte Produkt hat ausgezeichnete Flammhemmung, ausgezeichnete Wärmebeständigkeit und ausgezeichnete Schlagfestigkeit.

BESTE AUSFÜHRUNGSFORM DER ERFINDUNG

Die Erfindung wird nachstehend ausführlicher unter Bezugnahme auf die folgenden Beispiele und Vergleichsbeispiele beschrieben, die jedoch nicht als Beschränkung für den Umfang der Erfindung angesehen werden sollen.

In den folgenden Beispielen und Vergleichsbeispielen wurden verschiedene Eigenschaften in folgender Weise gemessen und bewertet.

(1) Flammhemmung:

Die selbstverlöschende Eigenschaft einer 3,1 mm (1/8 Inch) dicken Probe wurde nach der vertikalen Brennmethode (VB-Methode) geprüft, die in UL-94 beschrieben ist. Für die Bewertung der selbstverlöschenden Eigenschaft wurden folgende Kriterien angewendet.

- ◎ selbstverlöschend innerhalb weniger als 20 Sekunden
- selbstverlöschend innerhalb 20 bis 40 Sekunden, und
- X völlig verbrannt.

(2) Izod-Schlagfestigkeit:

Die Izod-Schlagfestigkeit einer 6,3 mm (1/4 Inch) dicken Probe mit V-Kerbe wurde bei 23°C gemäß ASTM-D256 gemessen (Einheit: kg·cm/cm).

(3) Abhängigkeit der Izod-Schlagfestigkeit von der Dicke:

Die Izod-Schlagfestigkeit einer 3,1 mm dicken Probe und einer 6,3 mm dicken Probe wurden in gleicher Weise wie vorstehend in Abschnitt (2) gemessen. Das Verhältnis der Izod-Schlagfestigkeit der 6,3 mm dicken Probe zu der Izod-Schlagfestigkeit der 3,1 mm dicken Probe wurde errechnet und als Index für die Abhängigkeit der Izod-Schlagfestigkeit von der Dicke verwendet. Je mehr sich das Verhältnis an 1 annähert, umso geringer ist die Abhängigkeit von der Dicke und umso stabiler ist die Schlagfestigkeit.

(4) Schmelzformungs-Beständigkeit (im wesentlichen keine Variation oder nur kleine Variationen der Qualität von durch Schmelzformen erhaltenen Formkörpern):

Die Schmelzextrusion einer Harzzusammensetzung wurde 10 Stunden lang unter Verwendung eines Schmelz-Extruders durchgeführt, und während dieser Zeit wurde jede Stunde, 10-mal, ein Formkörper als Probe entnommen. Die Werte der Izod-Schlagfestigkeit der erhaltenen 10 Formkörper wurden gemessen und die durchschnittliche Izod-Schlagfestigkeit sowie die Differenz zwischen dem höchsten und dem niedrigsten Wert der Izod-Schlagfestigkeit wurden errechnet. Dann wurde die Differenz zwischen dem höchsten und dem niedrigsten Wert der Izod-Schlagfestigkeit als Prozentsatz, bezogen auf die durchschnittliche Izod-Schlagfestigkeit errechnet (dieser prozentuale Wert wird nachstehend einfach als "prozentuale Izod-Variation" bezeichnet). Durch Verwendung dieser "prozentualen Izod-Variation" wurde die Schmelzformungsstabilität bewertet (wobei die Schmelzformungsstabilität durch geringe Variation der Qualität von durch Schmelzformen erhaltenen Formkörpern charakterisiert wird und ein Index für die Eignung zum kontinuierlichen Formen ist).

(5) Schmelzfließrate (MFR):

Die Schmelzfließrate wurde gemäß ASTM-D1238 gemessen und als Kriterium für die Schmelzfluidität verwendet. Dabei wurde die Schmelzfließrate durch die Extrusionsrate (g/10 min.) einer Harzzusammensetzung, gemessen bei einer Schmelztemperatur von 260°C unter einer Belastung von 10 kg bestimmt.

(6) SP-Wert ( $\delta$ ) (Löslichkeitsparameter) und durchschnittlicher SP-Wert:

Der SP-Wert wurde gemäß der nachstehenden Formel von Fedor errechnet, die in Polymer Engineering and Science, 14, (2), 147 (1974) beschrieben ist. Dabei wurden die Daten  $\Delta e_1$  und  $\Delta v_1$  von funktionellen Gruppen der Polymeren verwendet, die ebenfalls dort beschrieben sind:

$$\delta = [\Sigma(\Delta e_1) / \Sigma(\Delta v_1)]^{1/2}$$

worin  $\Delta e_1$  die Kohäsionsenergie pro Einheit funktioneller Gruppen und  $\Delta v_1$  das Molekularvolumen pro Einheit funktioneller Gruppen bedeutet und die Einheit für  $\delta$   $(\text{cal}/\text{cm}^3)^{1/2}$  ist.

Der durchschnittliche SP-Wert eines Copolymeren oder eines Gemisches von Copolymeren wurde aus den SP-Werten der verschiedenen konstituierenden Monomereinheiten des Copolymeren oder aus den SP-Werten der verschiedenen konstituierenden Copolymeren eines Copolymergemisches errechnet, indem die jeweiligen SP-Werte der verschiedenen konstituierenden Monomereinheiten oder der verschiedenen konstituierenden Copolymeren in Übereinstimmung mit den jeweiligen Gewichtsverhältnissen der konstituierenden Monomereinheiten oder der konstituierenden Copolymeren proportional unter der Annahme zugeordnet wurden, dass die Regel der Additivität angewendet werden kann.

#### (7) Aussehen der Oberfläche

Der Vergilbungsindex  $\Delta YI$  einer Harzzusammensetzung wurde gemäß JIS-Z-8722 gemessen. Je kleiner der Wert  $\Delta YI$  ist, umso kleiner ist der Vergilbungsindex und umso besser ist das Aussehen der Oberfläche.

#### (8) Lichtbeständigkeit

Die Lichtbeständigkeit wurde unter Verwendung eines ATLAS CI35W Weathermometers (hergestellt und vertrieben von ATLAS Electric Devices Co., USA) als Testvorrichtung für die Lichtbeständigkeit gemäß JIS K7102 bestimmt. Die Prüfbedingungen waren folgende: Innentemperatur der Testvorrichtung:  $55^\circ\text{C}$ , Feuchtigkeit: 55 %, kein Regen und Belichtung mit Xenon-Licht (Wellenlänge: 340 nm, Energie:  $0,30 \text{ W/m}^2$ ), während 300 Stunden. Die Farbdifferenz  $\Delta E$  zwischen einem Formkörper vor Belichtung und einem Formkörper nach Belichtung wurde mit Hilfe eines SM-Farbcomputers Modell SM-3

(hergestellt und vertrieben von Suga Test Instruments Co., Ltd., Japan) gemäß der L.a.b.-Methode gemessen, um die Farbtondifferenz festzustellen. Je kleiner die Farbtondifferenz ist, umso höher ist die Lichtbeständigkeit.

In den Beispielen und Vergleichsbeispielen wurden folgende Bestandteile verwendet.

(a) Siliciumhaltige Flammschutzmittel als aromatische Gruppen enthaltende Siliconverbindung (B) und Flammschutzmittel (C):

Die in Tabellen 1 bis 7 gezeigten Siliciumverbindungen (welche die vorstehend erwähnte Einheit D und/oder T enthielten) wurden in im wesentlichen der gleichen Weise hergestellt, wie in Kapitel 17 "Shirikoon seizou-hou (Methode zur Herstellung eines Silicons)" des "Silicone Handbook", herausgegeben von Kunio Ito und verlegt von The Nikkan Kogyo Shim-bun Ltd., Japan (1990) beschrieben ist.

Es ist festzuhalten, dass einige der in Vergleichsbeispielen anstelle von Komponente (B) verwendete Vergleichskomponenten die Anforderungen an Komponente (B) der aromatischen Polycarbonatharzzusammensetzung gemäß der Erfindung nicht erfüllen, diese Vergleichskomponenten werden jedoch aus Gründen der Zweckmäßigkeit ebenfalls der Klasse von Komponente (B) zugeordnet.

(b) Polymere

(1) Aromatisches Polycarbonat (PC):

Ein handelsübliches Bisphenol A-Polycarbonat [Handelsname Calibre 13, hergestellt und vertrieben von Sumitomo Dow Limited, Japan (nachstehend als "PC" bezeichnet)] wurde eingesetzt.

(2) Kautschukmodifiziertes Styrolpolymeres (HIPS):

Es wurde ein handelsübliches kautschukmodifiziertes Styrolpolymeres (Butadien/Styrol-Gewichtsverhältnis = 10/90) (Handelsname: Styron, hergestellt und vertrieben von Asahi



Chemical Industry Co., Ltd., Japan) (nachstehend als "HIPS" bezeichnet) verwendet.

(3) ABS-Harz (ABS):

Es wurde ein handelsübliches ABS-Harz (Acrylnitril/Butadien/Styrol-Gewichtsverhältnis = 24/20/56) (Handelsname: Stylac ABS, hergestellt und vertrieben von Asahi Chemical Industry Co., Ltd., Japan) verwendet (das nachstehend als "ABS" bezeichnet ist).

(4) Styrol-Ethylen-Butylen-Styrol-Copolymeres (SEBS):

Ein handelsübliches Styrol-Ethylen-Butylen-Styrol-Copolymeres {Handelsname: Tuftec, hergestellt und vertrieben von Asahi Chemical Industry Co., Ltd., Japan} (nachstehend als "SEBS" bezeichnet) wurde verwendet.

(5) Mit Maleinsäureanhydrid modifiziertes Styrol-Ethylen-Butylen-Styrol-Copolymeres (m-SEBS):

Es wurde ein handelsübliches mit Maleinsäureanhydrid modifiziertes Styrol-Ethylen-Butylen-Styrol-Copolymeres verwendet (Handelsname: Tuftec, hergestellt und vertrieben von Asahi Chemical Industry Co., Ltd., Japan) (nachstehend als "m-SEBS" bezeichnet).

(6) Styrol-Butadien-Copolymeres (SB):

Es wurde ein handelsübliches Styrol-Butadien-Copolymeres (Handelsname: Tufprene, hergestellt und vertrieben von Asahi Chemical Industry Co., Ltd., Japan) verwendet (nachstehend als "SB" bezeichnet).

(7) Epoxydiertes Styrol-Butadien-Copolymeres (ESB):

Es wurde ein handelsübliches epoxydiertes Styrol-Butadien-Copolymeres (Handelsname: Epofriend, hergestellt und vertrieben von Daicel Chemical Industry Co., Ltd., Japan) verwendet (nachstehend als "ESB" bezeichnet).

28.08.00

- 48 -

## (8) Syndiotaktisches Styrol-Polymeres (SPS):

Ein syndiotaktisches Polystyrol mit einem Gewichtsmittel des Molekulargewichts von 320 000 und einer Schmelztemperatur von 270°C (nachstehend als "SPS" bezeichnet) wurde verwendet.

## (9) Polyphenylenether (PPE):

Es wurde handelsüblicher Polyphenylenether (Handelsname Xyron, hergestellt und vertrieben von Asahi Chemical Industry Co., Ltd., Japan) verwendet (nachstehend als "PPE" bezeichnet).

## (10) Polypropylen (PP):

Es wurde handelsübliches Polypropylen (hergestellt und vertrieben von Japan Polychem Corporation, Japan) verwendet (nachstehend als "PP" bezeichnet).

## (11) Ethylen-Octen-Polymeres (EO):

Es wurde handelsübliches Ethylen-Octen-Copolymeres (Handelsname Engage, hergestellt und vertrieben von Dupont-Dow Elastomers Company, USA) verwendet (nachstehend als "EO" bezeichnet).

## (12) Acrylnitril-Styrol-Copolymeres (AS):

A) Acrylnitril-Styrol-Copolymeres mit relativ ungleichförmiger Copolymerisationsverteilung (AS-1)

Das nach der folgenden Methode hergestellte Styrol-Copolymeres wurde als verträglich machendes Mittel verwendet.

Ein Gemisch von 3,4 Gew.-Teilen Acrylnitril, 81,6 Gew.-Teilen Styrol, 15 Gew.-Teilen Ethylbenzol und, als Polymerisationsinitiator 0,03 Gew.-Teil 1,1-Bis(t-butylperoxy)-3,3,5-trimethylcyclohexan wurde kontinuierlich in einer Rate von 0,7 l/h in einen Kolbenstromreaktor eingeführt, der drei in Serie verbundene Zonen hatte, die jeweils mit einem Rührer ausgestattet waren. Die Polymerisation wurde in der ersten Zone bei 126°C und 100 Upm, in der zweiten Zone bei 135°C und 20 Upm und in der dritten Zone bei 147°C und 10 Upm durchge-

führt. Danach wurde das gebildete Polymerisationsreaktionsgemisch in eine Entgasungsvorrichtung mit einer Temperatur von 230°C übergeführt, um nichtumgesetzte Monomere und das Lösungsmittel zu entfernen. Dabei wurde ein statistisches Copolymeres (nachstehend als "AS-1" bezeichnet) erhalten. Das erhaltene Copolymer wurde mit Hilfe einer in der internationalen veröffentlichten Patentanmeldung Nr. WO 95-35346 beschriebenen Methode analysiert. Es wurde gefunden, dass das Copolymer 6 Gew.-% Acrylnitril-Monomereinheiten und 94 Gew.-% Styrol-Monomereinheiten enthielt (gemessen durch Infrarot-Absorptionsspektrophotometrie) und einen durchschnittlichen SP-Wert von 10,75 hatte. Außerdem wurde die anteilweise Verteilung der Monomerkomponenten des Copolymeren durch Flüssigkeitschromatographie bestimmt. Es wurde gefunden, dass der Anteil der Acrylnitril-Monomereinheiten in dem Copolymeren im Bereich von 0 bis 12 Gew.-% variierte, dass der maximale SP-Wert 11,0, der minimale SP-Wert 10,5 und der  $\Delta$ SP-Wert 0,5 betrugen.

B) Acrylnitril-Styrol-Copolymeres mit relativ gleichförmiger Copolymerisationsverteilung (AS-2)

Das mit Hilfe der folgenden Methode hergestellte Copolymer wurde als verträglich machendes Mittel eingesetzt.

Im wesentlichen die gleiche Verfahrensweise wie die für die Herstellung des Copolymeren AS-1 beschriebene wurde wiederholt, mit der Abänderung, dass als Polymerisationsreaktor ein Mischreaktor für vollständige Vermischung (complete mixing type reactor) verwendet wurde. Das erhaltene Copolymer wurde analysiert. Es wurde gefunden, dass das Copolymer 6 Gew.-% an Acrylnitril-Monomereinheiten und 94 Gew.-% an Styrol-Monomereinheiten (gemessen durch Infrarot-Absorptionsspektrophotometrie) enthielt. Außerdem wurde die Verteilung der Anteile der Monomerkomponenten des Copolymeren durch Flüssigkeitschromatographie gemessen. Es wurde gefunden, dass das Copolymer einen maximalen SP-Wert von 11,0, einen minimalen SP-Wert von 10,8 und einen  $\Delta$ SP-Wert von 0,2 hatte.

20.08.00

- 50 -

(13) EO-PP-Vernetzungsprodukt (TPV):

100 Gew.-Teile eines Gemisches von EO und PP (Gewichtsverhältnis 50/50), 0,5 Gew.-Teil eines organischen Peroxids und 1 Gew.-Teil Divinylbenzol wurden mit Hilfe eines Doppelschneckenextruders schmelzgeknetet und extrudiert, wobei ein dynamisch vernetztes thermoplastisches Polypropylen (nachstehend als "TPV" bezeichnet) erhalten wurde.

(14) Polybutylenterephthalat (PBT):

Es wurde ein handelsübliches Polybutylenterephthalat (hergestellt und vertrieben von Toray Industries, Japan) verwendet (nachstehend als "PBT" bezeichnet).

(15) Epoxypolymeres (EP):

Es wurde ein handelsübliches nicht halogensubstituiertes thermoplastisches Epoxypolymeres verwendet (hergestellt und vertrieben von Asahi-Ciba Co., Ltd., Japan) (nachstehend als "EP" bezeichnet).

(16) Polyamid (PA):

Es wurde ein handelsübliches Polyamidharz verwendet (Handelsname Polyamide 6, hergestellt und vertrieben von Toray Industries, Japan) (nachstehend als "PA" bezeichnet).

(C) Flammhemmendes Mittel, das kein Silicium enthält:

(1) Metallsalz einer organischen Sulfonsäure

A) Es wurde handelsübliches Kaliumdiphenylsulfon-3-sulfonat verwendet (hergestellt und vertrieben von UCB Japan Co., Ltd., Japan) (nachstehend als "KSS" bezeichnet).

B) Es wurde handelsübliches Kaliumperfluorbutansulfonat verwendet (hergestellt und vertrieben von Dainippon Ink & Chemicals, Inc., Japan) (nachstehend als "FBK" bezeichnet).

(2) 1,3-Phenylen-bis(diphenylphosphat) (FP)

Es wurde ein handelsüblicher oligomerer aromatischer Phosphorsäureester verwendet, der sich von Resorcin ableitet (Handelsname CR733S, hergestellt und vertrieben von Daihachi Chemical Industry Co., Ltd., Japan) (nachstehend als "FP" bezeichnet).

(3) Polytetrafluorethylen (PTFE)

Es wurde handelsübliches Polytetrafluorethylen (Gewichtsmittel des Molekulargewichts 1 000 000) (hergestellt und vertrieben von Daikin Industries, Ltd., Japan) verwendet (nachstehend als "PTFE" bezeichnet).

(4) Melamincyanurat (MC)

Es wurde handelsübliches Melamincyanurat (hergestellt und vertrieben von Nissan Chemical Industries, Ltd., Japan) verwendet (nachstehend als "MC" bezeichnet).

(5) Phosphazen

A) Lineares Phosphazen

Poly(diphenoxyphosphazen) mit einer Schmelztemperatur von 110°C (nachstehend als "PPP" bezeichnet) wurde verwendet.

B) Cyclisches Phosphazen

Es wurde Hexakis(acryloylethoxy)phosphazen (nachstehend als "HAP" bezeichnet) verwendet.

(6) Tetrazol

Es wurde ein handelsübliches 5,5'-Bistetrazol-piperazinsalz verwendet (hergestellt und vertrieben von Toyo Kasei Kogyo Co., Ltd., Japan).

Beispiele 1 bis 9 und Vergleichsbeispiele 1 bis 11

Nach den in Tabellen 1 und 2 angegebenen Formulierungen wurden die Komponenten mit Hilfe eines Henschel-Mischers miteinander vermischt. Jedes der gebildeten Gemische wurde für

sich in einen Doppelschneckenextruder übergeführt (40 mm Ø, L/D = 47), der zwei Schnecken mit Doppelgewinde hatte, in welchem eine Zuführungsöffnung im Mittelteil des Zylinders angeordnet war und die Gesamtlänge der Schnecken der Knetzone entsprach. Die kontinuierliche Schmelzextrusion wurde 10 Stunden lang bei 280°C durchgeführt, wobei eine Harzzusammensetzung erhalten wurde. Die erhaltene Zusammensetzung wurde dem Spritzgießen zur Herstellung von Formkörpern unterworfen, wobei die Zylindertemperatur 270°C und die Formtemperatur 60°C betrugen. Die erhaltenen Formkörper wurden den Prüfungen für die vorstehend angegebenen Eigenschaften unterworfen. Die Ergebnisse sind in Tabellen 1 und 2 gezeigt.

Aus Tabellen 1 und 2 ist ersichtlich, dass die erfindungsgemäße aromatische Polycarbonatharz-Zusammensetzung, die als Komponente (B) ein aus D-Einheiten bestehendes lineares Silicon enthält und 5 Mol-% oder mehr an aromatischen Gruppen aufweist, nicht nur deshalb vorteilhaft, weil sie hohe flammhemmende Wirkung, ausgezeichnete Fließfähigkeit der Schmelze und ausgezeichnete Schmelz-Formungsstabilität (d.h. im wesentlichen keine Schwankung oder nur eine geringe Schwankung der Qualität von durch Schmelzformen erhaltenen Formkörpern) zeigt, sondern auch deshalb, weil sie zur Herstellung eines Formkörpers verwendet werden kann, der im Vergleich mit den Eigenschaften einer aromatischen Polycarbonatharz-Zusammensetzung, die ein verzweigtes oder vernetztes Siliconharz mit einem Gehalt an D-Einheiten enthält, ausgezeichnete mechanische Eigenschaften, ausgezeichnete Lichtbeständigkeit und überragendes Aussehen besitzt.

Es wurde außerdem gefunden, dass dann, wenn in der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung das aromatische Polycarbonat durch einen Polyphenylenether ersetzt wird, die Verbesserung der Flammhemmung und Lichtbeständigkeit (die mit Hilfe der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung erzielt wird) nicht erreicht werden kann.

#### Beispiele 10 bis 57

Die Herstellung und Prüfung der Harzzusammensetzungen erfolgte im wesentlichen in gleicher Weise wie in Beispiel 1, mit der Abänderung, dass die Arten und Mengen der Komponenten der Harzzusammensetzungen in der in Tabellen 3 bis 6 angegebenen Weise verändert wurden. Die Ergebnisse sind in Tabellen 3 bis 6 gezeigt.

Aus Tabellen 3 bis 6 geht hervor, dass die flammhemmende Eigenschaft der Harzzusammensetzung weiter verbessert werden kann, wenn zu der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung weiterhin ein flammhemmendes Mittel (C) zugesetzt wird, welches aus der Gruppe der Metallsalz-Flammschutzmittel, phosphorhaltigen Flammschutzmittel, stickstoffhaltigen Flammschutzmittel, siliciumhaltigen Flammschutzmittel, die verschieden von Komponente (B) sind, anorganischen Flammschutzmittel und Fluor enthaltenden Flammschutzmittel ausgewählt ist.

Die Tabellen 3 bis 6 zeigen außerdem, dass durch Zugabe eines Kautschukpolymeren zu dem in der erfindungsgemäßen Zusammensetzung verwendeten PC die Schlagfestigkeit der Harzzusammensetzung stark verbessert wird und dass durch Zugabe eines Polyesters (wie PBT), eines thermoplastischen Epoxypolymeren oder eines Polyamids zu dem in der erfindungsgemäßen Zusammensetzung verwendeten PC die Schmelzfluidität der Harzzusammensetzung stark verbessert wird.

#### Beispiele 58 bis 69

Die Herstellung und Prüfung der Harzzusammensetzungen erfolgte in im wesentlichen der gleichen Weise wie in Beispiel 1, mit der Abänderung, daß die Arten und Mengen der in der Harzzusammensetzung vorliegenden Komponenten in der in Tabelle 7 angegebenen Weise verändert wurden. Die Ergebnisse sind in Tabelle 7 aufgeführt.

Tabelle 7 zeigt, daß selbst dann, wenn Komponente (B) der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung ein Gemisch aus einer Siliconverbindung, die aromatische Gruppen in einer Menge

von 5 bis weniger als 50 Mol-% und einer Siliconverbindung, die aromatische Gruppen in einer Menge von 50 Mol-% oder darüber enthält (wobei das Verhältnis der zwei verschiedenen Arten von Siliconverbindungen variiert) ist, die verschiedenen ausgezeichneten Wirkungen der vorliegenden Erfindung erzielt werden können, solange jede der Komponente (B) bildenden zwei verschiedenen Arten von Siliconverbindungen die erfindungsgemäßen Erfordernisse für Komponente (B) erfüllt.

In Tabellen 1 bis 7 werden folgende Abkürzungen verwendet:

PC: aromatisches Polycarbonat  
PPE: Polyphenylenether  
HIPS: kautschukmodifiziertes Styrolpolymeres  
ABS: ABS-Harz  
SEBS: Styrol-Ethylen-Butylen-Styrol-Copolymeres  
m-SEBS: mit Maleinsäureanhydrid modifiziertes Styrol-Ethylen-Butylen-Styrol-Copolymeres  
SB: Styrol-Butadien-Copolymeres  
ESB: epoxydiertes Styrol-Butadien-Copolymeres  
SPS: Syndiotaktisches Styrolpolymeres  
PP: Polypropylen  
EO: Ethylen-Octen-Copolymeres  
AS-1 und AS-2: Acrylnitril-Styrol-Copolymeres  
TPV: EO-PP-Vernetzungsprodukt  
PBT: Polybutylenterephthalat  
EP: Epoxyharz  
KSS: Kalium-Diphenylsulfon-3-Sulfonat  
FBK: Kalium-Perfluorbutansulfonat  
FP: 1,3-Phenylen-bis(diphenylphosphat)  
PTFE: Polytetrafluorethylen  
MC: Melamincyanurat  
PPP: Poly(diphenoxyphosphazen)  
HAP: Hexakis(acryloylethoxy)phosphazen und  
BPP: 5,5'-Bistetrazol-Piperazinsalz



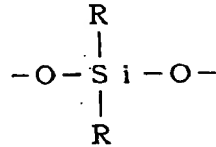
Tabelle 1

Zusammensetzung (Gewichtsverhältnis)	Beispiele		Vergleichsbeispiele					
	1	2	1	2	3	4	5	6
(A) PC	92		100		92	0		0
(B) Menge	8		0		8	0	8	8
D-Einheiten/T-Einheiten (Molverhältnis) <sup>1)</sup>	100/0		-	100/0	50/50	-	100/0	50/50
Phenylgruppen/ Methylgruppen (Molverhältnis)	25/75	5/95	-	3/97	25/75	-	25/75	25/75
Vorliegen oder Abwesenheit von Methoxygruppen, wobei R <sup>3</sup> oder R <sup>4</sup> eine Methylgruppe ist	keine							
PPE			-			100		92
Flammhemmung <sup>2)</sup>	⊙	⊙	X	X	X	⊙	⊙	⊙
Izod-Schlagfestigkeit (kg · cm/cm)	15	12	15	7	5	7	5	3
Aussehen:								
Vergilbungsindex AYI	2	2	3	3	3	43	44	45
Lichtbeständigkeit:								
Differenz des Farbtons ΔE	2	2	3	3	5	20	22	25
Extrusionsstabilität:								
prozentuale Schwankung des Izod-Werts	5	7	5	29	33	9	18	40

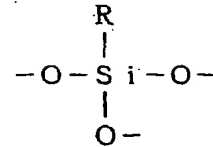
DE 100 80 144 T1

Anmerkungen für Tabelle 1

1) Struktur der D-Einheit



Struktur der T-Einheit



- 2) Flammhemmung:   ⊙ selbstverlöschend in weniger als 2 Sekunde  
                           ○ selbstverlöschend in 20 bis 40 Sekunden und  
                           X völlig verbrannt.

Die obigen Anmerkungen 1) und 2) gelten auch für die nachstehenden Tabellen 2 bis 7.



Tabelle 3

		Beispiele															
		10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21				
(A) Menge		95														98	
(Zusammensetzung (Gewichtsverhältnis))	PC	PC	PC/ABS 90/10	PC/ABS 90/10	PC/ABS 90/10	PC/HIPS 90/10	PC/HIPS 90/10	PC/HIPS 90/10	PC/HIPS AS-1 90/5/5	PC/HIPS AS-2 90/5/5	PC/HIPS PPE 90/4	PC/HIPS PPE AS-1 90/4	PC/HIPS PPE AS-1 90/4	PC/HIPS PPE AS-1 90/4	PC/HIPS PPE AS-1 90/4		
	5															2	
	D-Einheiten/T-Einheiten (Molverhältnis) <sup>1)</sup>															100/0	
	Phenylgruppen/ Methylgruppen (Molverhältnis)															50/50	
	Vorliegen oder Abwesenheit von Methoxygruppen, wobei R <sup>3</sup> oder R <sup>4</sup> eine Methylgruppe ist															keine	
(C)	0	1(KSS)	0	1(KSS)	5(FP)	0	1(KSS)	1(KSS)	1(KSS)	0	0	0	0	0	0		
Flammhemmung 2)	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0		
Izod-Schlagfestigkeit (kg · cm/cm)	15	14	41	40	38	9	8	42	10	8	38	42	42	42	42		
Aussehen:	2	2	2	3	3	3	2	2	2	3	3	3	2	2	2		
Vergilbungsindex ΔYI ΔYI	2	2	2	3	3	3	2	2	2	2	4	4	3	3	3		
Lichtbeständigkeit:	2	2	2	3	3	3	2	2	2	2	4	4	3	3	3		
Differenz des Farbtons ΔE	6	5	5	6	4	6	7	4	5	4	5	4	5	4	4		
Extrusionsstabilität:																	
prozentuale Schwankung des Izod-Werts																	

100 80 144 T1

DE 100 80 144 T1

Tabelle 4

		Beispiele											
		22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33
(A) Menge		93											
Zusammensetzung (Gewichtsverhältnis)		PC	PC/SEBS 90/10	PC/ESB 90/10	PC/TPV 90/10	PC/TPV /SEBS -90/5 /5	PC/TPV /SEBS /AS-1 -90/4 /3/3	PC/SPS 90/10	PC/SPS /PPE -85/10 /5	PC/SPS /PPE /AS-1 -80/10 /5/5	PC/SPS /PPE /AS-1 -75/10 /5/5/5	PC/TPV	PC/TPV 90/10
	(B) Menge	7											
	D-Einheiten/T-Einheiten (Molverhältnis) <sup>1)</sup> Phenylgruppen/ Methylgruppen (Molverhältnis)	100/0											
Vorliegen oder Abwesenheit von Methoxygruppen, wobei R <sup>3</sup> oder R <sup>4</sup> eine Methylgruppe ist		50/50											
(C)		keine											
Flammhemmung 2)		0											
Izod-Schlagfestigkeit (kg · cm/cm)		12	45	41	23	32	46	10	25	35	44	22	26
Aussehen:		2	2	3	2	2	2	2	3	3	3	2	2
Vergilbungsindex ΔYI		2	2	3	2	2	2	2	4	4	4	2	2
Lichtbeständigkeit:		6	6	4	7	6	5	6	7	5	3	5	3
Differenz des Farbtons ΔE													
Extrusionsstabilität:													
prozentuale Schwankung des Izod-Werts													

2008 DE 100 80 144 T1

Tabelle 5

Beispiele													
34	35	36	37	38	39	40	41	42	43				
(A) Menge										98			
PC	PC /m-SEBS 95/5	PC /m-SEBS /AS-1 95/4/1	PC /m-SEBS 95/5	PC /m-SEBS /AS-1 95/4/1	PC /m-SEBS 95/5	PC /m-SEBS /AS-1 95/4/1	PC /m-SEBS 95/5	PC /m-SEBS /AS-1 95/4/1	PC /m-SEBS 95/5	PC /m-SEBS /AS-1 95/4/1	PC /m-SEBS 95/5	PC /m-SEBS /AS-1 95/4/1	PC /m-SEBS 95/4/1
(B) Menge										2			
D-Einheiten/T-Einheiten (Molverhältnis) 1)										100/0			
Phenylgruppen/ Methylgruppen (Molverhältnis)										50/50			
Vorliegen oder Abwesenheit von Methoxygruppen, wobei R <sup>3</sup> oder R <sup>4</sup> eine Methylgruppe ist										keine			
(C)										0			
0	0	0	0	0,5 FBK	0,5 FBK	0,5 FBK	0,5 PTFE	0,5 KSS	0,5 PTFE	0,5 PTFE	1,0 MC		
3,1	1,9	1,2	2,0	1,5	1,9	1,3	1,8	1,2	1,3	1,2	1,3		
Aussehen:													
2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2		
Vergilbungsindex ΔVI													
2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2		
Lichtbeständigkeit:													
2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2		
Differenz des Farbtons ΔE													
6	4	3	5	4	5	4	6	5	4	5	4		
Extrusionsstabilität:													
prozentuale Schwankung des Izod-Werts													

\* Je mehr das Verhältnis der Izod-Schlagfestigkeit der 6,3 mm dicken Probe zu der Izod-Schlagfestigkeit der 3,1 mm dicken Probe sich 1 annähert, umso geringer ist die Dickenabhängigkeit und umso stabiler ist die Schlagfestigkeit

Tabelle 6

Beispiele																
		44	45	46	47	48	49	50	51	52	53	54	55	56	57	
(A) Menge		93														
(B) Menge		7														
D-Einheiten/T-Einheiten (Molverhältnis) 1)		100/0														
Phenylgruppen/ Methylgruppen (Molverhältnis)		25/75														
Vorliegen oder Abwesenheit von Methoxygruppen, wobei R <sup>3</sup> oder R <sup>4</sup> eine Methylgruppe ist		keine														
(C)		-	0,5 BPP	0,5 PPP	0,5 HAP	-	0,5 KSS	0,5/0,5 -KSS/ PPP	0,5/0,5 -KSS/ PPP	0,5 KSS	-	0,5 KSS	0,5/0,5 -KSS/ PPP	0,5 KSS	0,5 KSS	
Flammhemmung 2)		○	⊙	⊙	⊙	○	⊙	⊙	⊙	○	⊙	⊙	⊙	○	⊙	
Fluidität: Schmelzfließrate (g/10 min.)		45	43	47	48	80	82	83	82	110	112	115	114	105	110	
Aussehen:		2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	
Vergilbungsindex ΔVI		2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	
Lichtbeständigkeit:		2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	
Differenz des Farbtons ΔE		5	3	6	7	8	7	7	9	9	8	8	10	8	7	
Extrusionsstabilität: prozentuale Schwankung des Izod-Werts																

DE 100 80 144 T1

Tabelle 7

		Beispiele													
		58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69		
		90													
Zusammensetzung (Gewichtsverhältnis)	(A) Menge	PC													
	(B-1) Menge	10	8	5	2	0	10	8	5	2	0	5			
	D-Einheiten/T-Einheiten (Molverhältnis) <sup>1)</sup>	100/0													
	Phenylgruppen/ Methylgruppen (Molverhältnis)	80/20													
	Vorliegen oder Abwesenheit von Methoxygruppen, wobei R <sup>3</sup> oder R <sup>4</sup> eine Methylgruppe ist	keine													
	(B-2) Menge	0	2	5	8	10	0	2	5	8	10	5			
	D-Einheiten/T-Einheiten (Molverhältnis) <sup>1)</sup>	100/0													
	Phenylgruppen Methylgruppen (Molverhältnis)	10/90													
	Vorliegen oder Abwesenheit von Methoxygruppen, wobei R <sup>3</sup> oder R <sup>4</sup> eine Methylgruppe ist	keine													
	(C)	0													
		0.5/0.5													
		KSS/PTFE													
Flammhemmung 2)		☉	☉	☉	☉	☉	☉	☉	☉	☉	☉	☉	☉	☉	0.5/0.5 FBK/PTFE
Izod-Schlagfestigkeit (kg · cm/cm)		13	12	12	12	10	12	11	11	11	9	22	26		
Aussehen:		2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2		
Vergilbungsindex ΔVI															
Lichtbeständigkeit:		2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2	2		
Differenz des Farbtons ΔE															
Extrusionsstabilität:		4	4	5	5	9	5	6	6	6	10	5	3		
		prozentuale Schwankung des Izod-Werts													

100 80 144 T1



INDUSTRIELLE ANWENDBARKEIT

Erfindungsgemäß wird eine aromatische Polycarbonatharz-Zusammensetzung zur Verfügung gestellt, die nicht nur ausgezeichnete Flammhemmung zeigt, sondern auch hervorragende Schmelzfluidität und ausgezeichnete Schmelzformungsstabilität besitzt (d.h. die im wesentlichen keine Schwankung oder nur eine geringe Schwankung der Qualität von durch Schmelzformen erhaltenen Formkörpern zeigt), und die vorteilhaft zur Herstellung von Formkörpern mit ausgezeichneten mechanischen Eigenschaften, ausgezeichneter Lichtbeständigkeit und hervorragendem Aussehen verwendet werden kann.

Die aus der erfindungsgemäßen Harzzusammensetzung hergestellten flammhemmenden Formkörper können vorteilhaft auf verschiedenen Gebieten eingesetzt werden, beispielsweise für Gehäuse, Chassis oder Teile von elektrischen Haushaltsgeräten, wie VTR (Videorecorder), Verteiler-Schalttafeln, Fernsehgeräte, Tonbandgeräte, Kondensatoren, Haushaltssteckdosen, Kassettenrecorder, Videokassetten, Videodisk-Player, Klimaanlage, Luftbefeuchter und elektrische Heißluftgeräte, Gehäuse, Chassis oder Teile für automatische Büromaschinen, wie Hauptgehäuse (mechanische Chassis) für CD-ROM, Drucker, Faxgeräte, PPC (Normalpapierkopierer), CRT (Kathodenröhren), Wordprozessoren, Bürocomputersysteme, Diskettenlaufwerke, Tastaturen, Schreibmaschinen, ECR (elektronische Cash Register), elektronische Rechner, Tonerkartuschen und Telefone, elektrische und elektronische Teile, wie Anschlußteile, Spulenkörper, Schalter, Relais, Relaissockel, LED (Licht emittierende Diode), variable Kondensatoren, Wechselstromadapter (AC), FBT-Hochspannungsspulen, FBT-Gehäuse, IFT-Spulenkörper, Buchsen, Lautstärke-Regler und Motorenteile, sowie Teile für Automobile, wie für das Armaturenbrett, Kühlergrill, Cluster, Lautsprechergrill, Jalousie, Konsolenbox, Defroster garnitur, Ornamente, Sicherungskasten, Relaisgehäuse und Connector-Shift-Tape. Die

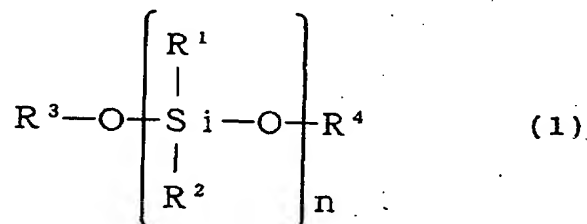
28.08.00 DE 100 80 144 T1

- 64 -

vorliegende Erfindung spielt daher auf diesen industriellen Gebieten eine wichtige Rolle..

## ZUSAMMENFASSUNG

Offenbart wird eine aromatische Polycarbonatharz-Zusammensetzung, die eine Harzkomponente (A), die aus der aus einem aromatischen Polycarbonat und einem Harzgemisch aus einem aromatischen Polycarbonat und mindestens einem von dem aromatischen Polycarbonat verschiedenen anderen organischen Polymerharz bestehenden Gruppe ausgewählt ist, wobei das Harzgemisch einen Gehalt an aromatischem Polycarbonat von 50 Gew.-% oder mehr hat, und mindestens eine aromatische Gruppen enthaltende Siliconverbindung (B) enthält, welche aus der aus aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit linearer Konfiguration und aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit cyclischer Konfiguration bestehenden Gruppe ausgewählt ist, wobei die mindestens eine aromatische Gruppen enthaltende Siliconverbindung (B) ein Monomeres, ein Polymeres oder ein Gemisch davon umfaßt, welches durch die folgende Formel (1) dargestellt ist:



worin die Komponente (B) die aromatischen Gruppen in einer Menge von 5 bis 100 Mol-%, bezogen auf die gesamte molare Menge von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$ , enthält.

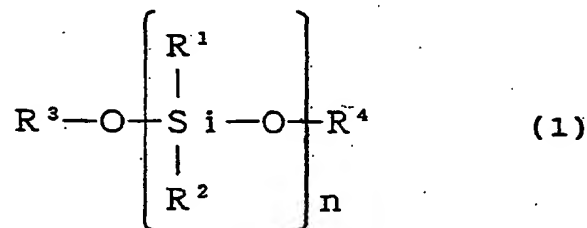
## Patentansprüche

1. Aromatische Polycarbonatharz-Zusammensetzung, welche enthält:

100 Gew.-Teile einer Harzkomponente (A), die aus der aus einem aromatischen Polycarbonat und einem Harzgemisch aus einem aromatischen Polycarbonat und mindestens einem von einem aromatischen Polycarbonat verschiedenen organischen Polymerharz bestehenden Gruppe ausgewählt ist, wobei das Harzgemisch einen Gehalt an aromatischem Polycarbonat von 50 Gew.-% oder mehr hat, und

0,1 bis 100 Gew.-Teile mindestens einer aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindung (B), welche aus der aus aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit linearer Konfiguration und aromatische Gruppen enthaltenden Siliconverbindungen mit cyclischer Konfiguration bestehenden Gruppe ausgewählt ist,

wobei die mindestens eine aromatische Gruppen enthaltende Siliconverbindung (B) ein Monomeres, ein Polymeres oder ein Gemisch davon umfasst, welches durch die nachstehende Formel (1) dargestellt ist



worin:

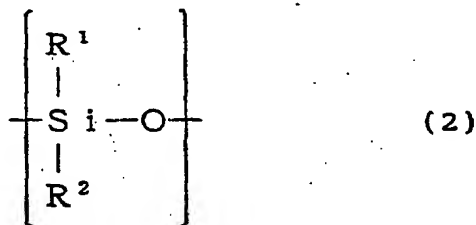
jedes von R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> unabhängig ein Wasserstoffatom oder eine einwertige C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>-Kohlenwasserstoffgruppe darstellt;

jedes von  $R^3$  und  $R^4$  unabhängig ein Wasserstoffatom oder eine einwertige oder zweiwertige  $C_1$ - $C_{20}$ -Kohlenwasserstoffgruppe darstellt, wobei dann, wenn jedes von  $R^3$  und  $R^4$  unabhängig eine zweiwertige  $C_1$ - $C_{20}$ -Kohlenwasserstoffgruppe bedeutet,  $R^3$  und  $R^4$  unter Bildung eines Ringes aneinander gebunden sind,

mindestens eines von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$  eine aromatische  $C_6$ - $C_{20}$ -Gruppe ist, deren Valenz der Definition von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  oder  $R^4$  entspricht, und

$n$  1 oder mehr, angegeben als Zahlenmittel des  $n$ -Wertes, ist,

wobei das Polymere als Komponente (B) mehrere wiederkehrende Einheiten, die jeweils durch die nachstehende Formel (2) dargestellt sind:



in der jedes von  $R^1$  und  $R^2$  wie für Formel (1) definiert ist, und

endständige Gruppen  $R^3$  und  $R^4$  umfasst, worin jedes von  $R^3$  und  $R^4$  wie für Formel (1) definiert ist,

wobei die wiederkehrenden Einheiten, die jeweils durch Formel (2) dargestellt sind, gleich oder verschieden sind, so dass das Polymere als Komponente (B) ein Homopolymeres oder ein Copolymeres ist, wobei das Copolymeres statistische, Block- oder alternierende Konfiguration hat, und

wobei die Komponente (B) die aromatische Gruppe in einer Menge von 5 bis 100 Mol-%, bezogen auf die gesamte molare Menge von  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$ , enthält.

2. Polycarbonatharz-Zusammensetzung nach Anspruch 1, wobei die Komponente (B) eine kinematische Viskosität von 1  $cm^2/sec$

(100 Centistokes) oder mehr, gemessen bei 25 °C nach JIS-K2410, zeigt.

3. Polycarbonatharz-Zusammensetzung nach Anspruch 1 oder 2, wobei die Komponente (B) ein Gemisch aus  
einer Siliconverbindung, welche aromatische Gruppen in einer Menge von 5 bis weniger als 50 Mol-%, bezogen auf die gesamte molare Menge an  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$ , enthält und  
einer Siliconverbindung, welche die aromatische Gruppe in einer Menge von 50 Mol-% oder mehr, bezogen auf die gesamte molare Menge an  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und  $R^4$ , enthält, umfasst.
4. Polycarbonatharz-Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 3, die weiterhin 0,001 bis 100 Gew.-Teile eines flammhemmenden Mittels (C) enthält.
5. Polycarbonatharz-Zusammensetzung nach Anspruch 4, wobei das flammhemmende Mittel (C) mindestens ein flammhemmendes Mittel, das aus der nachstehenden Gruppe ausgewählt ist, umfaßt: Metallsalze als flammhemmendes Mittel, phosphorhaltige flammhemmende Mittel, stickstoffhaltige flammhemmende Mittel, Silicium enthaltende flammhemmende Mittel, die von der Siliconverbindung (B) verschieden sind, anorganische flammhemmende Mittel und fluorhaltige flammhemmende Mittel.
6. Polycarbonatharz-Zusammensetzung nach Anspruch 5, wobei das flammhemmende Metallsalz ein Metallsalz einer organischen Schwefelverbindung darstellt.
7. Polycarbonatharz-Zusammensetzung nach Anspruch 6, wobei das Metallsalz einer organischen Schwefelverbindung ein Metallsalz einer organischen Sulfonsäure ist.
8. Polycarbonatharz-Zusammensetzung nach Anspruch 5, wobei das flammhemmende Metallsalz ein aromatisches organisches

Polymeres umfasst, welches Sulfonsäuremetallsalzgruppen enthält.

9. Polycarbonatharz-Zusammensetzung nach Anspruch 5, wobei das stickstoffhaltige flammhemmende Mittel mindestens eine Verbindung aus der Gruppe Triazinverbindungen, Triazolverbindungen, Tetrazolverbindungen, Phosphazenverbindungen und Diazoverbindungen enthält.

10. Polycarbonatharz-Zusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 9, wobei die Harzkomponente (A) ein Harzgemisch aus einem aromatischen Polycarbonat und mindestens einem organischen Polymerharz ist, welches aus der aus aromatischen Vinylpolymeren, Olefinpolymeren, Polyestern, Polyamiden, Polyphenylenethern und Epoxypolymeren bestehenden Gruppe ausgewählt ist.